

Titre: Évaluation non-destructive et non-invasive du développement de la
Title: réaction alcali-silice dans le béton par spectroscopie d'impédance
électrique

Auteur: Yasaman Khajehnouri
Author:

Date: 2019

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Khajehnouri, Y. (2019). Évaluation non-destructive et non-invasive du
Citation: développement de la réaction alcali-silice dans le béton par spectroscopie
d'impédance électrique [Thèse de doctorat, Polytechnique Montréal]. PolyPublie.
<https://publications.polymtl.ca/3933/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie:
PolyPublie URL: <https://publications.polymtl.ca/3933/>

**Directeurs de
recherche:** Michel Chouteau, & Patrice Rivard
Advisors:

Programme: Génie minéral
Program:

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

**Évaluation non-destructive et non-invasive du développement de la réaction
alcali-silice dans le béton par spectroscopie d'impédance électrique**

YASAMAN KHAJEHNOURI

Département des génies civil, géologique et des mines

Thèse présentée en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*
Génie minéral

Juin 2019

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Cette thèse intitulée :

**Évaluation non-destructive et non-invasive du développement de la réaction
alcali-silice dans le béton par spectroscopie d'impédance électrique**

présentée par **Yasaman KHAJEHNOURI**

en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*
a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

Mahdi BEN FTIMA, président

Michel C. CHOUTEAU , membre et directeur de recherche

Patrice RIVARD, membre et codirecteur de recherche

Gabriel FABIEN-OUELLET, membre

Jean-Paul BALAYSSAC, membre externe

DÉDICACE

*À ma famille et à tous mes amis,
vous me manquerez. . .*

Je suis de ceux qui pensent que la science est d'une grande beauté. Un scientifique dans son laboratoire est non seulement un technicien : il est aussi un enfant placé devant des phénomènes naturels qui l'impressionnent comme des contes de fées.
(Marie Curie)

REMERCIEMENTS

Je voudrais tout d’abord exprimer toute ma gratitude à mon directeur de recherche, Michel Chouteau, qui m’a soutenu avec son expérience, ses idées, et ses conseils précieux et pédagogiques pendant ces cinq années de travail. Je ne sais comment le remercier pour sa patience, ses encouragements et son soutien moral. Je dois dire qu’il est le plus prestigieux professeur que j’ai eu le plaisir de rencontrer depuis ma maîtrise.

J’adresse mes sincères remerciements également à mon codirecteur de recherche, le professeur Patrice Rivard, pour son support, son encadrement assidu et son intérêt indéfectible tout au long de ce projet.

J’aimerais remercier le Conseil de Recherches en Sciences Naturelles et en Génie du Canada (CRSNG) ainsi que le Centre de Recherche sur les Infrastructures en Béton (CRIB) pour leur soutien financier à ce projet.

Un grand merci à mon collègue Charles L. Bérubé, pour avoir rendu disponible son code d’inversion stochastique pour la modélisation des réponses de résistivité complexe, pour sa grande collaboration et ses précieux conseils.

Je tiens à remercier particulièrement Étienne Bélanger (Laboratoire d’Hydro-environnement, CGM), Manon Leduc et Jérôme Leroy (laboratoire de Géochimie Analytique, CGM), Louis-Pierre Barrette (Laboratoire de Géo-ingénierie, CGM) et Philippe Plamondon (Centre de Caractérisation Microscopique des Matériaux, Génie Physique) pour leur aide technique et leur disponibilité.

Je suis également reconnaissant envers l’équipe du Laboratoire de structures de l’Université de Sherbrooke : Danick Charbonneau et Ghyslain Luc pour la fabrication des échantillons de béton et les essais mécaniques, ainsi que le groupe de recherche en génie des structures à Polytechnique Montréal (Pr Jean-Philippe Charron et Cédric Androuët).

Finalement, un gros merci à ma famille, à toutes mes amies pour leur soutien amical et inconditionnel au long de mes études. Mon succès dans la réalisation de ce projet n’aurait certainement pas été possible sans leur généreux et constant soutien.

RÉSUMÉ

La réaction alcalis-silice (RAS) est l'un des mécanismes les plus courants et les plus néfastes qui réduit la fonctionnalité des structures en béton (mécanique/durabilité). À ce jour, il n'y a pas de moyens vraiment efficaces de limiter la dégradation causée par cette réaction dans les structures en béton existantes ; il est possible de caractériser visuellement les fissures causées par l'expansion du béton affecté par la RAS et de mesurer les déformations de l'ouvrage au fil du temps. Ce projet de recherche propose l'application de la polarisation provoquée spectrale (PPS) comme technique non destructive afin de caractériser les comportements électriques d'une structure en béton complexe et affectée par l'ASR avant même son apparition visuelle (fissuration).

Ce projet a été réalisé en trois phases : la première phase consistait à développer un dispositif expérimental pouvant offrir une précision de déphasage de 1 mrad en employant une unité de polarisation provoquée spectrale SIP Fuchs III dans une gamme de fréquences allant de 1.43 mHz à 20 kHz. Notre porte-échantillon a permis de suivre et de caractériser simultanément les réponses électriques complexes à deux positions diamétralement opposées d'un échantillon. La configuration à quatre électrodes a été utilisée pour améliorer le rapport signal sur bruit. Afin d'évaluer la précision de notre système de mesure, des mesures PPS ont d'abord été réalisées sur un échantillon homogène de mortiers, puis sur un échantillon hétérogène de béton. La résolution des mesures électriques a été obtenue en contrôlant les paramètres externes tels que l'effet de couplage, le facteur géométrique, l'impédance de contact et la polarisation des électrodes. Des plaques d'aluminium-bronze (électrodes de courant) ainsi qu'un gel conducteur ont été utilisés afin d'atténuer la résistance de contact à l'interface entre les électrodes et la surface de l'échantillon. Dans ce cas, la densité de courant et l'impédance de contact des électrodes étaient suffisamment faibles pour éviter les effets non linéaires et les erreurs de polarisation pendant la mesure.

La deuxième phase portait porte sur la mise en évidence de la différence de comportement électrique complexe (PPS) entre les échantillons de béton non affectés et affectés par la RAS sous des conditions d'essai accélérées (solution de NaOH, 60°C). Les données PPS ont été ajustées avec le modèle de décomposition de Debye (DD) pour déterminer la résistivité DC (ρ_0) et la distribution de la chargeabilité (m) en fonction du temps de relaxation (τ). Selon les résultats obtenus, ρ_0 n'a pas été affecté par le développement de la RAS ; elle est fortement dépendante de la conductivité électrique de la solution (eau, NaOH). Cependant, ρ_0 a montré une augmentation constante pour les deux mélanges du béton (réactif ; RC, témoins ; NRC)

saturés de la même solution (NaOH ou eau). Cela peut être dû au développement du squelette de la matrice cimentaire avec le temps. Une évolution significative du déphasage (φ), de la chargeabilité totale (Σ_m) et du temps de relaxation moyen (τ_{mean}) a été constatée pour les échantillons de béton affectés par la RAS par rapport aux mélanges non affectés, en particulier à basse fréquence ($1.43 \text{ mHz} < f < 5.86 \text{ Hz}$). Une forte corrélation linéaire a été observée entre la chargeabilité normalisée et la partie imaginaire de la conductivité pour les mélanges réactifs accélérés (RC-NaOH), ce qui pourrait être associé à une augmentation de la conductivité de surface de la couche de Stern à la surface des grains réactifs ou à l'évolution de la surface spécifique causé par la production de gel de silice (RAS), ou les deux. Dans cette partie, nous avons proposé un modèle électrochimique conceptuel de la distribution des temps de relaxation afin de suivre l'évolution dans le temps du pic de chargeabilité pour l'échantillon de béton affecté par la RAS (RC-NaOH). Ce modèle a été basé sur la superposition de chargeabilités dues à trois groupes principaux de grains (granulats, sable et ciment). Les résultats ont montré une augmentation du pic de chargeabilité des mélanges réactifs à des temps de relaxation relativement longs $\tau > 100 \text{ s}$ correspondant à la taille de grains grossiers. Cette observation pourrait être associée à l'évolution de la polarisation ainsi qu'à l'augmentation de la densité de charge à la surface des agrégats (couche de Stern) affectée par la RAS.

La troisième phase portait sur la mise en évidence de la sensibilité de la méthode PPS à la réaction alcali-silice par rapport aux autres techniques classiques telles que les essais non destructifs (expansion, variation de masse, vitesse ultrasonore) et les examens destructifs (module d'élasticité, résistance à la compression, porosité, densité, analyses pétrographiques et minéralogiques). La corrélation possible a été étudiée entre les différentes signatures (électrique, physique, mécanique et chimique) afin de détecter et de surveiller le développement de la RAS au fil du temps. Les résultats montrent que l'expansion, l'analyse pétrographique avec l'évaluation des dommages, le module d'élasticité et la vitesse ultrasonique sont des critères fiables pour la caractérisation de l'endommagement lié à la RAS. Les réponses PPS (φ , Σ_m et τ_{mean}) des échantillons affectés ont montré une corrélation significative avec l'augmentation de l'expansion au cours du temps. Cette observation a été validée par l'utilisation de l'analyse pétrographique selon la méthode du Damage Rating Index (DRI) qui a montré la présence de fissures remplies de gel dans les agrégats et dans le ciment affecté par la RAS. En fin, la sensibilité de PPS en laboratoire a été validée comme une méthode non destructive pour surveiller le développement de la RAS ainsi que pour détecter une différence significative des réponses électriques (φ , Σ_m , τ_{mean}) entre les échantillons de béton non affectés et affectés par cette réaction.

ABSTRACT

The alkali-silica reaction (ASR) is one of the most common and harmful mechanisms that reduces the functionality of concrete structures (mechanical/durability). Nowadays, there is no way to limit the degradation of ASR reaction in the damaged concrete structures built; it is only possible to characterize visually the ASR-cracks which are caused by the expansion of concrete and to measure the deformations of the structure over time. Our research proposed the application of spectral induced polarization (SIP) as non-destructive technique in order to characterize the electrical behaviours of complex concrete structure affected by ASR before the damage is apparent.

This work consists of three phases; first step aims to develop an experimental setup achieving phase accuracy 1 mrad in the range from 1.43 mHz to 20 kHz using SIP Fuchs III system. Our sample holder allowed to monitor and to characterize simultaneously the electrical complex responses on opposite sides of the sample. The four-electrode configuration was used to improve the signal-to-noise ratio. In order to evaluate the precision of our laboratory configuration, SIP was first conducted on a homogeneous mortar sample, and then on a heterogeneous concrete specimen. The resolution of electrical measurement was achieved by controlling the external parameters such as coupling effect, geometric factor, contact impedance and electrode polarization). Aluminum-bronze plates with conductive gel as the electric current electrodes were used to reduce the contact resistance between the current electrodes and the concrete surface. In this case, the current density and the contact impedance of the electrodes were sufficiently low to avoid non-linear effects and polarization error.

Second part focuses on highlighting the difference of electrical behaviour between non-affected and affected concrete samples by ASR under accelerated test conditions (60°C). The SIP data were fitted with a Debye decomposition model (DD) to determine the DC bulk resistivity (ρ_0) and the distribution of the chargeability (m) as a function of the relaxation time (τ), it was not affected by the ASR development, and it strongly depended on the electrical conductivity of the solution (water, NaOH). However, ρ_0 showed a constant increase due to the development of the matrix skeleton over time. A significant evolution of phase lag (φ), total chargeability (Σ_m) and mean relaxation time (τ_{mean}) was found for affected concrete samples by ASR compared to the non-affected mixtures, especially over the low frequency range (1.43 mHz $< f < 5.86$ Hz). There was a strong linear correlation between normalized chargeability and the imaginary part of the electrical conductivity for accelerate reactive mixtures (RC-NaOH),

which could be associated with an increase in surface conductivity of the Stern layer at reactive grain surface or the evolution of specific surface area due to production of ASR silica gel, or both. In this part, we proposed a conceptual electrochemical model of relaxation time distribution in order to monitor the evolution in time of chargeability peak for concrete affected by ASR (RC-NaOH). This model was based on the superimposition of chargeabilities due to three main groups of mineral grains (aggregates, sand and cement). The results showed an increase in chargeability peak of reactive mixtures at relatively long relaxation times $\tau > 100$ s that was corresponded to the coarse-grained area. This observation could be due to the evolution of polarization and increasing the charge density at the aggregates surface (Stern layer) affected by ASR.

The third part highlighted the potential value of SIP method compared to the other conventional techniques such as the non-destructive techniques (expansion, mass variation, ultrasonic pulse velocity) and the destructive testing (modulus of elasticity, compressive strength, porosity, density, petrographic examination). The study of the possible correlation between their different signatures was conducted for detection and time-lapse monitoring of ASR development. According to our results, the expansion, petrographic examination, modulus of elasticity and ultrasonic pulse velocity method showed good sensibility to distinguish the damage caused by ASR. The PPS responses (φ , Σ_m and τ_{mean}) of the affected concrete samples showed a significant increasing trend with expansion over time. This observation was validated using petrographic analysis according to the Damage Rating Index method (DRI) which showed the presence of gel-filled cracks in aggregates and cement affected by ASR. Finally, the sensitivity of the laboratory SIP measurement was validated as a non-destructive method to monitor the development of the RAS, as well as to detect a significant difference of electrical responses (φ , Σ_m and τ_{mean}) between non-affected and affected concrete samples by ASR.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	iii
REMERCIEMENTS	iv
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	vii
TABLE DES MATIÈRES	ix
LISTE DES TABLEAUX	xiii
LISTE DES FIGURES	xiv
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	xxiii
LISTE DES ANNEXES	xxv
CHAPITRE 1 INTRODUCTION	1
1.1 Problématique et originalité	3
1.2 Hypothèse	4
1.3 Objectifs de la recherche	5
1.3.1 Objectif général	5
1.3.2 Objectifs spécifiques	5
1.4 Méthodologie appliquée	5
1.5 Plan de thèse	7
CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE	8
2.1 Réaction alcali-silice	8
2.2 Analyse des modèles réactionnels	9
2.3 Effets mécaniques et physiques de la réactivité alcali-silice	14
2.3.1 Viscosité du gel	14
2.3.2 Propriétés mécaniques	15
2.3.3 Variation de masse volumique	19
2.4 Propriétés électriques du béton	23
2.5 Polarisation provoquée spectrale	25

2.5.1	Facteurs à contrôler	27
2.6	Analyse de la double couche électrique	29
2.7	Décomposition de Debye	35
2.8	Conclusion	37
CHAPITRE 3	STRUCTURE DE THÈSE PAR ARTICLES	38
3.1	ARTICLE 1 (CHAPITRE 4) : Mesure des propriétés électriques des échantillons de mortier et de béton par polarisation provoquée spectrale : mise en place en laboratoire	38
3.2	ARTICLE 2 (CHAPITRE 5) : Évaluation non invasive et non destructive du développement de la réaction alcali-silice dans le béton par polarisation provoquée spectrale : évaluation des propriétés électriques complexes	39
3.3	ARTICLE 3 (CHAPITRE 6) : Caractérisation du béton affecté par la réaction alcali-silice accélérée en laboratoire : validation des propriétés électriques complexes	39
CHAPITRE 4	ARTICLE 1 : MEASURING ELECTRICAL PROPERTIES OF MORTAR AND CONCRETE SAMPLES USING THE SPECTRAL INDUCED POLARIZATION METHOD : LABORATORY SET-UP	41
4.1	Introduction	42
4.2	Measurement protocol	44
4.2.1	External factors	47
4.2.2	Materials and sample holder	50
4.2.3	Current and measuring electrodes	52
4.3	Experimental SIP results	52
4.3.1	Current intensity test	52
4.3.2	Contact impedance test	55
4.3.3	Effect of electrode sponge moisture	58
4.4	Discussion	60
4.5	Conclusion	62
CHAPITRE 5	ARTICLE 2 : NON-DESTRUCTIVE NON-INVASIVE ASSESSMENT OF THE DEVELOPMENT OF ALKALI-SILICA REACTION IN CONCRETE BY SPECTRAL INDUCED POLARIZATION : EVALUATION OF THE COMPLEX ELECTRICAL PROPERTIES	63
5.1	Introduction	64
5.2	Spectral induced polarization	66

5.2.1	Principle	66
5.2.2	The electrical double layer	67
5.2.3	SIP inversion	68
5.3	Material and methods	69
5.4	Experimental Results	70
5.4.1	SIP measurement	70
5.4.2	Debye decomposition	80
5.5	Discussion	91
5.6	Conclusion	97
CHAPITRE 6 ARTICLE 3 : LABORATORY CHARACTERIZATION OF CONCRETE AFFECTED BY ACCELERATED ALKALI-SILICA REACTION : VALIDATION OF COMPLEX ELECTRICAL PROPERTIES		100
6.1	Introduction	100
6.2	Material	102
6.3	Methods	103
6.3.1	Non-destructive testing	104
6.3.2	Destructive testing	105
6.4	Experimental results	106
6.4.1	SIP measurement	106
6.4.2	Mass variation	112
6.4.3	Expansion	113
6.4.4	Ultrasonic pulse velocity	114
6.4.5	Compressive strength	115
6.4.6	Modulus of elasticity	116
6.4.7	Mineralogical characterization	118
6.4.8	Damage Rating Index	122
6.4.9	Porosity and density	124
6.4.10	Container solution analysis	125
6.5	Comparison with SIP responses	126
6.6	Discussion	128
6.7	Conclusion	129
CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE		131
CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS		136

RÉFÉRENCES	139
ANNEXES	151

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 4.1	Composition of the mortar. Porosity was measured after 20 weeks of curing.	50
Tableau 4.2	Composition of the concrete. Porosity was measured after 8 weeks of curing	51
Tableau 5.1	Concrete mixture. W/C : water–cement ratio.	70
Tableau 6.1	Concrete mixture. W/C : water–cement ratio.	103
Tableau 6.2	schedule for testing and monitoring concrete samples. * The samples tested by destructive analysis, # Number of concrete samples.	105
Tableau 6.3	Porosity and density of the reactive concretes.	125
Tableau 6.4	Porosity and density of the non-reactive concretes.	125
Tableau 6.5	Simplified table summarizing the signatures of the concrete samples using the laboratory techniques, submitted to accelerate test conditions (saturation, 60 °C). NSR : No Significant response. ↓ : slight decreasing. ↑ : slight increasing. ↓↓ : significant decreasing. ↑↑ : significant increasing. ~ : similar. > : higher symbol. < : lower symbol. τ_{mean} : mean relaxation time. M_n : normalized chargeability. Σ_m : total chargeability. V_p : P-velocity. NA : not available.	129

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Localisation des ouvrages routiers et hydrauliques touchés par la RAS au Québec (Fournier, 2006).	1
Figure 1.2	Illustration de la RAS sur des piliers de pont (gauche) et au coin des dalles de béton (droit) (Thomas et al., 2011).	2
Figure 1.3	Démarche expérimentale appliquée pour les mesures de laboratoire. .	6
Figure 2.1	Mécanisme de fissuration induite par la RAS dans le béton.	8
Figure 2.2	Structures de $\text{SiO}_4(\text{Q}_4)$ et $\text{SiO}_{5/2}^-(\text{Q}_3)$	11
Figure 2.3	Analyse du béton par microscope électronique à balayage (MEB). La composition du gel de silice alcalin varie (diminution en silice) avec la distance à la source (agrégat réactif) et le temps (Winter, 2012). . . .	13
Figure 2.4	Modifications de la nature et des propriétés du gel de la réaction alcali-silice (Urhan, 1987).	15
Figure 2.5	Variation du module d'élasticité du mélange témoin (Mix C) et des mélanges réactifs (Mix A; sable de Thames Valley, Mix B; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003). .	17
Figure 2.6	Variations de vitesse ultrasonore du prisme (100 x100 x 500 mm ³) et du cylindre (150 x300 mm ²) en fonction du temps. Mix C : mélange témoin, Mix A et Mix B : mélanges réactifs (Mix A; sable de Thames Valley, Mix B; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003).	18
Figure 2.7	Résistance à la compression en fonction de l'expansion du mélange témoin (Mix C) et des mélanges réactifs (Mix A; sable de Thames Valley, Mix B; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003).	19
Figure 2.8	Constituants de la microstructure et fractions volumiques du béton (considéré comme un milieu poreux partiellement saturé). S : masse du squelette du béton. ϕ^u : fraction volumique de phase non-affectée, ϕ^s : fraction volumique de phase affectée par la RAS. ϕ^l : fraction volumique de liquide (l) . ϕ^g : fraction volumique du gaz. φ : masse (Bangert et al., 2004).	20
Figure 2.9	Expansion observée et prévue de l'échantillon de béton (Steffens et al., 2003; Larive, 1997)	22
Figure 2.10	Variation de masse (Multon et al., 2005).	23

Figure 2.11	Représentation schématique de la microstructure du béton (Song, 2000).	24
Figure 2.12	Diagramme de Nyquist de la réponse complexe pour un matériau cimentaire. Im : partie imaginaire, Re : partie réelle. Modifié de Perron and Beaudoin (2002) et de Sun et al. (2017).	24
Figure 2.13	Données obtenues par la méthode de Polarisation Provoquée Spectrale (PPS). Le dessin modifiée d'après Okay Ahi (2011).	25
Figure 2.14	Éléments externes à contrôler pendant la mesure électrique PPS.	27
Figure 2.15	Comparaison du potentiel mesuré entre les électrodes de chlorure de plomb et en acier inoxydable (Dahlin et al., 2002).	28
Figure 2.16	Schéma de la double couche électrique dans l'espace poreux montrant la distribution des ions à l'équilibre (Revil and Florsch, 2010).	30
Figure 2.17	Schéma de polarisation de membrane. Modifié d'après Reynolds (2011).	31
Figure 2.18	Polarisation de Maxwell-Wagner (polarisation d'interface) (A) Alignement des charges associées à l'interface solide-liquide (B) Accumulation des charges à l'interface liquide-air sous l'application du champ électrique (Chen and Or, 2006).	32
Figure 2.19	Courbe de déphasage (en mrad) en fonction de la fréquence pour un matériau granulaire. Les flèches présentent la variation de la fréquence de résonance avec la taille des grains (Revil and Florsch, 2010).	33
Figure 2.20	Évolution de différent phénomène de polarisation en fonction de fréquence dans un milieu poreux chargé. La α -polarisation correspond à la polarisation de la double couche électrique, la β -polarisation correspond à la polarisation de Maxwell-Wagner, et la γ polarisation concerne la polarisation des molécules d'eau (liées et libres) avec leur réorientation sous la champ électrique. Les fréquences caractéristiques f_p et f_d correspondent à une fréquence caractéristique pour la polarisation de l'espace vide et à la transition entre la -polarisation et la polarisation diélectrique à haute fréquence, respectivement. ε : la permittivité diélectrique (charges liées avec les mouvements faibles). Modifiée de Revil (2013).	34
Figure 4.1	Measurement system with four potential non-polarizable electrodes (PE-Ag/AgCl :1-4) and two current electrodes (CE). Z-sample : impedance across the sample. Z-CE : contact impedances for the current electrodes. Z-sponge : contact impedances at potential electrodes.	46

Figure 4.2	SIP sample holder with external and internal electrodes configuration for SIP. PE : potential electrodes. I^+ and I^- show the flow of electrical current using aluminum-bronze plates.	47
Figure 4.3	External factors impacting quality of electrical measurement on samples.	48
Figure 4.4	Computation of the geometric factor by COMSOL modeling. ΔV_{int} : electric potential difference for internal electrodes. ΔV_{ext} : electric potential difference for external electrodes.	49
Figure 4.5	Electric current transmitted through the mortar sample for three applied source voltages (1 V, 3 V, and 10 V) on the frequency range 1.43 mHz to 20 KHz using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B), and stainless steel studs (C). Resistivity of the hydrated lime solution saturating the sample is $0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$	53
Figure 4.6	Measured apparent resistivity of saturated mortar for different current intensities (source voltages of 1 V, 3 V and 10 V) for the external electrodes layout using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B) and stainless steel studs (C). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$	54
Figure 4.7	Measured phase lag spectra of saturated mortar for different current intensities (source voltages : 1 V, 3 V, 10 V) for the external electrode layout using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B) and stainless steel studs (C). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$	55
Figure 4.8	Effect of contact impedance on the SIP responses for measurement system using external receiver electrode layouts (PE :1-2, PE :3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Solution resistivity : $R_{\text{hydrated lime}} \cong 0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$	56
Figure 4.9	Impact of contact impedance on the SIP responses for measurement system using internal receiver electrode layouts (PE : 1-2, PE : 3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$	57

Figure 4.10	Impact of sponge moisture content (MC) on the complex resistivity measurement of concrete sample using Ag-AgCl potential electrodes for the external electrode layout (PE : 1-2, PE : 3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \Omega \cdot m$ at $24 \pm 0.1^\circ C$	58
Figure 4.11	Measured electrical responses according to repeated measurements successively on a concrete sample at week 8 of curing without any change in the settings between each repetition. The SIP measurements were repeated 4 times (Rep : 1, 2, 3, 4) using the PE :1-2 and PE :3-4 dipoles. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \Omega \cdot m$ at $24 \pm 0.1^\circ C$	59
Figure 4.12	Real and imaginary resistivity spectra according to successively repeated SIP measurements on a saturated concrete sample at week 8 of curing over a wide frequency range from 1.43 to 20 kHz. The DD-model response is superimposed and fitted on the measured SIP responses with phase errors below 1 mrad and amplitude errors of 0.1% over the same frequency spectrum (1.43 mHz-20 kHz). Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \Omega \cdot m$ at $24 \pm 0.1^\circ C$	60
Figure 5.1	Monitoring the resistivity of container solution ; a) water (H ₂ O), b) 1 N NaOH over 22 weeks for the reactive and non-reactive concrete samples.	72
Figure 5.2	Monitoring the measured resistivity and phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples saturated with water (RC-H ₂ O : solid blue symbols) and in NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{NaOH} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega \cdot m$ and $\rho_{H_2O} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega \cdot m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.	74
Figure 5.3	Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the non-reactive concrete samples saturated with water (NRC-H ₂ O : blue hollow symbols) and (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{NaOH} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega \cdot m$ and $\rho_{H_2O} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega \cdot m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.	76

Figure 5.4	Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples (RC : solid red symbols) and the non-reactive ones (NRC : hollow red symbols) saturated with the NaOH solution. The container solution resistivity values were $\rho_{\text{RC-NaOH}} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{\text{NRC-NaOH}} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively.	78
Figure 5.5	Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples (RC : blue solid symbols) and the non-reactive ones (NRC : blue hollow symbols) saturated with water. The container solution resistivity values were $\rho_{\text{RC-H}_2\text{O}} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ and $\rho_{\text{NRC-H}_2\text{O}} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at 24°C , respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.	79
Figure 5.6	Relaxation time distribution (RTD) of concrete samples saturated with water (RC-7-H ₂ O and NRC-7-H ₂ O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) from SIP data in the frequency range [1.43 mHz-20 kHz]. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is estimated to 10^3 s (displayed by a black triangle).	81
Figure 5.7	Relaxation time distribution (RTD) of concrete samples saturated with water (RC-7-H ₂ O and NRC-7-H ₂ O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) from SIP data in the frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz]. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is estimated to 10^3 s (displayed by a black triangle).	82
Figure 5.8	Integrating parameters of Debye decomposition over the full-frequency range (1.43 mHz-20 kHz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.	84
Figure 5.9	Integrating parameters of Debye decomposition at low frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz] for (a) the reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.	86
Figure 5.10	Integrating parameters of Debye decomposition at intermediate frequency range (11 Hz- 94 Hz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.	87

Figure 5.11	Integrating parameters of Debye decomposition at very high-frequency range (189 Hz-20 kHz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.	89
Figure 5.12	Correlation between DD integrating parameters of concrete samples saturated with water (RC-7-H ₂ O and NRC-7-H ₂ O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) at the low frequency range (1.43 mHz -5.86 Hz). (a) Variation of DC bulk resistivity (ρ_0) with time. (b) Variation of total chargeability (Σ_m) with time. (c) Variation of normalized chargeability (M_n) with time. (d) Normalized chargeability (M_n) versus imaginary conductivity (σ'').	91
Figure 5.13	Evolution of RTD for RC-1-NaOH with time for T(s) ranging from 10^{-6} to 10^4 s. The black dashed vertical lines correspond to the approximate limits of relaxation times computed from particle size distribution for aggregates, sand, and hydrated cement paste. The blue dashed line corresponds to the increase in chargeability (m) with time of the granular media (aggregate) affected by ASR. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is displayed by a black triangle.	93
Figure 5.14	Monitoring of the normalized bulk resistivity (ρ_0/ρ_w) for saturated concrete samples (RC and NRC) over 22 weeks.	96
Figure 6.1	Methodology for testing the concrete samples and analyzing the collected data.	103
Figure 6.2	Monitoring the measured resistivity over 22 weeks. a) Reactive concrete samples saturated with H ₂ O (RC-H ₂ O : solid blue symbols) and NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{RC-NaOH} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{RC-H_2O} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ at 24 °C from weeks 4 to 22, respectively. b) Reference concrete samples saturated with water (NRC-H ₂ O : blue hollow symbols) and NaOH (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{NRC-NaOH} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ and $\rho_{NRC-H_2O} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at 24 °C from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.	108

Figure 6.3	Monitoring the phase lag responses over 22 weeks. a) Reactive concrete samples saturated with H ₂ O (RC-H ₂ O : solid blue symbols) and NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{\text{RC-NaOH}} \cong 0.062$ to $0.081 \text{ } \Omega.m$ and $\rho_{\text{RC-H}_2\text{O}} \cong 1.24$ to $1.17 \text{ } \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively. b) Reference concrete samples saturated with water (NRC-H ₂ O : blue hollow symbols) and NaOH (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{\text{NRC-NaOH}} \cong 0.059$ to $0.067 \text{ } \Omega.m$ and $\rho_{\text{NRC-H}_2\text{O}} \cong 1.25$ to $1.14 \text{ } \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.	110
Figure 6.4	Correlation between DD integrating parameters of concrete samples saturated with water (RC-7-H ₂ O and NRC-7-H ₂ O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) at the low frequency range (1.43 mHz -5.86 Hz). (a) Variation of total chargeability (Σ_m) with time. (b) Variation of the mean relaxation time (τ_{mean}) with. (c) Variation of DC bulk resistivity (ρ_0) with time.	112
Figure 6.5	Comparison of mass variations for the reactive (RC) and reference concrete samples (NRC) over 22 weeks. (a) Mass variation data (error bars are one standard deviation). (b) The bonded ASR gel on the reactive concrete wall (RC-1-NaOH) that was observed from weeks 10 to 22.	113
Figure 6.6	Mean length variation (expansion) for reactive (RC) and reference concrete (NRC) with time. Error bars are plotted when higher than the symbol sizes.	114
Figure 6.7	Comparison of physical and mechanical properties of concrete mixtures (RC, NRC). (a) Variation of velocity with time. (b) Correlation between UPV variation and expansion. Error bars are plotted when higher than the symbol sizes.	115
Figure 6.8	Compressive strength of concrete samples (RC, NRC) saturated with NaOH and tap water (H ₂ O) solution. As measurement can be done only once for each sample (no monitoring possible), the number of the selected sample is indicated.	116

Figure 6.9	Comparison of physical and mechanical properties of concrete mixtures (RC, NRC). a) Modulus of elasticity of samples. As measurement can be done only once for each sample (no monitoring possible), the number of the selected sample is indicated. b) Correlation between modulus of elasticity and variation of P-wave velocity (%).	117
Figure 6.10	SEM/EDS examinations of reactive concrete samples for RC-9-H ₂ O (a, b, c) and RC-2-NaOH (d, e, f) at Week 17. a) SEM image. b) X-ray sum spectra (weight %); the sum spectrum is calculated from the data acquired from all the pixels in the electron image. c) Maps consist in the individual phase maps related to the distribution of Si, Na, Ca, K, and Al displayed with different colors. Brighter colors indicate high concentrations of the chemical element. (SEM micrograph-scale = 100 μ m).	119
Figure 6.11	SEM/EDS examinations of reference concrete samples for NRC-9-H ₂ O (a, b, c) and NRC-3-NaOH (d, e, f) at Week 17. a) SEM/EDS examinations for saturated with NaOH . b) X-ray sum spectra (weight %); the sum spectrum is calculated from the data acquired from all the pixels in the electron image. c) Maps consist in the individual phase maps related to the distribution of Si, Na, Ca, K, and Al displayed with different colors. Brighter colors indicate high concentrations of the chemical element. (SEM micrograph-scale = 100 μ m)	121
Figure 6.12	Petrographic features of reference concrete saturated with NaOH (NRC-2-NaOH) for week 22. CCA : Cracks in coarse aggregate, OCA : Opened cracks in coarse aggregates, OCAG : Crack with reaction product in coarse aggregate, CCPG : Cracks with reaction product in cement paste, DAP : Disaggregated aggregate particles, RR : Reaction rim, BG : air bubbles filled with the gel. A, B, C, D, E are the different polished sections with the petrographic symptoms observed in the same concrete sample.	122
Figure 6.13	Results of the Damage Rating Index (DRI) of concrete samples at week 22. DRI charts are plotted for the concrete sample submitted to accelerated condition with 0,37 expansion (NRC-2-NaOH), and to non-accelerated condition with 0.03% (RC-7-H ₂ O) and 0.06% (NRC-7-H ₂ O). EXP : expansion.	123

Figure 6.14	Petrographic features of reference concrete saturated with tap water (NRC-7-H ₂ O) for week 22. CCA : Cracks in coarse aggregate, OCA : Opened cracks in coarse aggregates, OCAG : Crack with reaction products in coarse aggregate, CCP : Cracks in cement paste, CCPG : Cracks with reaction product in cement paste, DAP : Disaggregate/corroded aggregate particles, RR : Reaction rim, BG : air bubbles filled with the gel. A, B are the different polished sections with the petrographic symptoms observed in the same concrete sample. . .	124
Figure 6.15	Comparison of chemical elements concentration in different container solution for both mixtures (RC, NRC) from weeks 6 and 22. a) RC-NaOH. b) RC-H ₂ O. c) NRC-NaOH. d) NRC-H ₂ O.	126
Figure 6.16	Correlation between complex electrical resistivity responses and the expansion of reactive (RC) and reference (NRC) concrete samples. (a) Total chargeability versus expansion. (b) Mean relaxation time versus expansion.	127
Figure 7.1	Corrélation entre la résistance à la compression et l'expansion pour les échantillons de béton réactifs (RC) et non réactifs (NRC). Comme la mesure ne peut être effectuée qu'une seule fois pour chaque échantillon, le numéro de l'échantillon sélectionné est indiqué.	134
Figure B.1	Configuration des capteurs de test UPV (Malhotra et al., 2003). . . .	152
Figure B.2	Système de mesure UPV au laboratoire.	153
Figure C.1	Définition de la géométrie par COMSOL.	154
Figure C.2	Maillage établie par COMSOL.	155
Figure C.3	Calcule de la réponse électrique par COMSOL.	156
Figure D.1	Corrélation entre la chargeabilité totale et la vitesse de l'onde P (UPV). . .	157

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ASR :	Alkali-silica reaction
EDS :	Energy dispersive spectrometry
EDX :	Energy dispersive X-ray
SEM :	Scanning electron microscope
UPV :	Ultrasonic pulse velocity
DD :	Debye decomposition/décomposition de Debye
DRI :	Damage Rating Index
EIS :	Electrical impedance spectroscopy
SD :	Standard deviation
RC :	Reactive concrete (béton réactif)
NRC :	Non-reactive (béton témoin ou béton non-réactif)
RAG :	Réaction alcali-granulat
RAS :	Réaction alcali-silice
PPS :	Polarisation provoquée spectrale
SIP :	Spectral induced polarization
RTD :	Relaxation time distribution
EDL :	Electrical double layer
ITZ :	Interfacial transition zone
CCA :	Cracks in coarse aggregate
OCA :	Opened cracks in coarse aggregates
OCAG :	Crack with reaction product in coarse aggregate
CCPG :	Cracks with reaction product in cement paste
DAP :	Disaggregated aggregate particles
RR :	Reaction rim
BG :	Air bubbles filled with the gel
τ_{mean} :	Mean relaxation time (s)
Σ_m :	Total chargeability
ρ_0 :	DC bulk resistivity ($\Omega.m$)
σ_{bulk} :	Bulk conductivity of the saturated matrix (S/m)
σ_{surf} :	Surface conductivity (S/m)
σ_{el} :	Pore solution conductivity (S/m)
φ :	Phase lag (mrad)
τ	Relaxation time (s)

m	Chargeability
d_0 :	Grain diameter (m)
ω :	Angular frequency (rad.s^{-1})
D :	Diffusion coefficient (m^2/s)
S_{por} :	Specific surface area (m^{-1})
K :	Geometric factor
Λ :	Pore radius (m)
ρ_w :	Resistivity of the solution ($\Omega.m$)
F :	Formation factor (F)
m :	Cementation exponent (m)
ϕ :	Porosity
a :	Tortuosity
Σ^s :	Conductivity of the Stern layer (S)
Σ^d :	Surface conductivity of the diffuse layer (S)
M_n :	Normalized chargeability
σ''	Imaginary conductivity
Q_j :	Distributed current source (A m^{-3})
J^e :	Externally generated current density (SI unit : A m^{-2})
(ΔV) :	Potential difference
ρ^* :	complex resistivity
ρ' :	Real part of resistivity
ρ'' :	Imaginary part of resistivity
$ \rho $:	Resistivity amplitude
c :	Exposant du modèle Cole-Cole
V :	Vitesse de propagation (km /s)
E_d :	Module d'élasticité dynamique (kN/mm^2)
I :	Intensité du courant (A)
J :	Densité de courant (A/m^2)
ν	Coefficient de Poisson
E	Module d'Young

LISTE DES ANNEXES

Annexe A	Mesures de densité et de porosité	151
Annexe B	MÉTHODE ACOUSTIQUE LINÉAIRE	152
Annexe C	CALCULE DU FACTEUR GÉOMÉTRIQUE	154
Annexe D	CHARGEABILITÉ TOTALE VERSUS UPV	157

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Les problèmes liés à la réaction alcali-granulat (RAG) identifiés au début des années 1940 ont été constatés dans les structures de béton de plus de 50 pays à travers le monde (Fournier and Bérubé, 2000; Sims and Poole, 2017). Il est probable que les problèmes liés à la RAG soient sous-estimés dans un plus grand nombre de pays. Dans plusieurs cas, l'endommagement du béton peut être associé à d'autres causes non liées à la RAG. Il existe deux types de réaction dans cette catégorie ; la réaction alcali-silice (RAS) et la réaction alcali-carbonate (Fournier and Bérubé, 2000). La figure 6.5 illustre les emplacements des structures au Québec qui sont affectés par la réaction alcali-granulat et les sources connues de granulats réactifs. Ce projet de doctorat s'est centré sur le phénomène de la réaction alcali-silice.

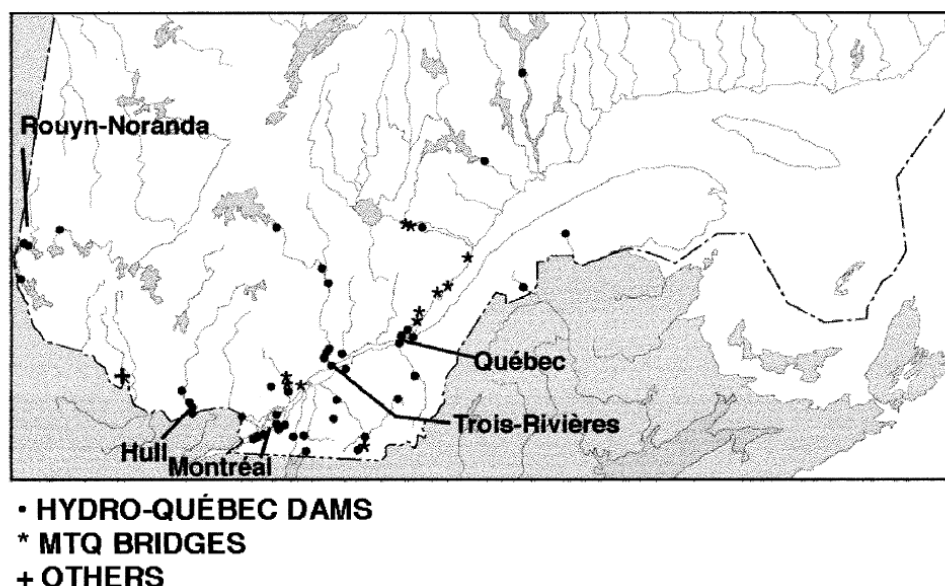


Figure 1.1 Localisation des ouvrages routiers et hydrauliques touchés par la RAS au Québec (Fournier, 2006).

Le développement de la réaction alcali-silice dépend d'un certain nombre de facteurs tels que la teneur élevée en alcalins (les concentrations en ions hydroxyle) dans la solution interstitielle, la concentration de granulats réactifs (silice amorphe), l'humidité ambiante (plus que 85%) et la température (Chatterji, 2005). Cette réaction évolue conduisant à une microstructure du béton plus complexe où différentes réactions et produits apparaissent (Fournier and Bérubé, 2011; Grattan-Bellew, 1995; Bulteel et al., 2002; Lindgard et al., 2012; Saouma et al., 2015a). Le mécanisme de cette réaction consiste en une migration des ions alcalins (Na^+ , K^+ , Ca^{2+})

et OH^-) de la solution interstitielle vers les granulats qui ont réagi avec la silice réactive (amorphe) ; un gel silico-calco-alcalin hydrophile se forme alors. Ce gel devient expansif et gonfle en présence de l'eau ; finalement, la pression interne développée par le gel peut dépasser la résistance à la traction du ciment causant une expansion et une fissuration de la pâte du ciment hydraté. Au cours du temps, les fissures permettent l'entrée de l'humidité qui peut être absorbée par le gel, ce qui favorise encore une expansion supplémentaire et de nouvelles fissures causées par la RAS. Si on ne recourt pas au carottage, il est possible d'identifier les effets provoqués par cette réaction (la pathologie) mais seulement une fois que ses symptômes (expansion, fissuration) deviennent visibles à la surface des ouvrages plusieurs années après leur construction (Figure 1.2).



Figure 1.2 Illustration de la RAS sur des piliers de pont (gauche) et au coin des dalles de béton (droit) (Thomas et al., 2011).

En revanche, des études en laboratoire telles que des analyses minéralogiques et pétrographiques peuvent être effectuées sur un volume limité d'échantillons prélevés par carottage sur les structures endommagées. Ce processus est toutefois lent, laborieux et relativement onéreux et ne peut pas être répété dans le temps. Il est difficile de trouver une méthode fiable permettant de détecter cette réaction avant l'apparition de fissures dans le béton endommagé. Pour cette raison, l'industrie a besoin d'une méthode non destructive pour la détection précoce de la RAS afin de déterminer le risque de cette réaction avant que les symptômes soient apparents.

Au Canada, afin de minimiser le risque de la RAS dans le béton, les granulats peuvent être choisis en fonction de la performance documentée sur le terrain, l'examen pétrographique,

ou les autres performances satisfaisant une séquence d’essais accélérés selon la norme CSA A23.2 -25 (ASTM C 1260) et des essais d’expansion à long terme avec la norme CSA A23.2-14A (ASTM C 1293). Une étude menée en Allemagne (Thomas et al., 2011) indique qu’au niveau de l’identification de cette réaction (RAS), aucune des méthodes conventionnelles n’est capable de fournir une évaluation complète et fiable de la réactivité des granulats.

Afin d’apporter des pistes de solution au problème de la détection précoce de la RAS, ce projet a exploré l’utilisation de polarisation provoquée spectrale (PPS) comme méthode non destructive afin de détecter la présence de RAS et de caractériser son état d’avancement. Nos recherches ont porté sur la détection des différences de signatures spectrales entre des échantillons témoins (considérés initialement comme non réactifs) et des échantillons (réactifs) affectés par la RAS. Ce projet s’est aussi penché sur les relations des réponses électriques des matériaux (béton) et le changement de sa microstructure (physique, chimique, mécanique) durant le développement de cette réaction. Dans le but d’identifier la RAS à une étape précoce, on a estimé le potentiel de la PPS pour caractériser l’état de la polarisation à l’interface granulat – solution (double couche électrique).

1.1 Problématique et originalité

La microstructure du béton a une grande importance ; elle peut influencer en grande partie les propriétés mécaniques et la durabilité du béton. Cette microstructure hétérogène est très complexe et comprend trois composantes principales : la pâte de ciment hydratée, les granulats et la zone de transition entre la pâte de ciment et les granulats. La pâte de ciment à elle seule est composée d’un réseau de cavités capillaires et de gel colloïdal (silicate de calcium hydraté ; C-S-H). Le comportement de la microstructure du béton peut être soumis à d’autres modifications physiques, chimiques et minéralogiques telles que la réaction alcali-silice (RAS). Le béton affecté de la réaction alcali-silice (RAS) est représenté comme un matériau à deux phases constitué d’un squelette solide et d’un gel d’expansion qui exerce une pression et conduit à l’endommagement grave du béton (Comi et al., 2014). La dégradation des structures en béton due à la RAS est pratiquement impossible à détecter avec les méthodes non invasives à ce jour. Dans les dernières années, les recherches ont souvent porté sur l’étude de la dilatation du béton par rapport au gel de la RAS (Rodrigues et al., 1999; Fournier and Bérubé, 2000; Bulteel et al., 2002; Ichikawa and Miura, 2007; Saouma et al., 2015b). D’autres auteurs (Comi et al., 2014; Rodrigues et al., 1999) ont caractérisé et prédit le degré d’expansion du béton à partir des mesures de la densité de charge sur la surface de la silice amorphe en appliquant le modèle double couche électrique (electrical double layer ou EDL, en anglais). Cependant le degré dépend de la valence relative des concentrations de cations

présents dans le gel de la RAS. Dans le cadre du diagnostic de la RAS, de nombreux travaux ont été menés sur l’observation des produits de cette réaction par la technique de fluorescence (Natesaiyer, 1993; Lesnicki et al., 2013), de spectroscopie à rayons X à dispersion d’énergie (Hou et al., 2004; Grattan-Bellew and Chan, 2013; Frybort et al., 2018), par l’examen des propriétés pétrophysiques (Fournier and Bérubé, 2011; Rivard et al., 2002; Monnin et al., 2006; Bleszynski and Thomas, 1998) et de la structure minéralogique (Deloye and Divet, 1992). Avec les méthodes conventionnelles, à nos jours il n’existe guère de moyen fiable et rapide pour diagnostiquer cette réaction délétère dans une structure faite de béton, avant l’apparition de fissures dans la structure, et donc trop tard pour une investigation précoce.

Ces dernières années, la polarisation provoquée spectrale (PPS), également connue sous le nom de spectroscopie d’impédance électrique (SIE), est reconnue comme une technique non destructive pour la caractérisation rapide des matériaux (par rapport à d’autres techniques utilisées pour l’évaluation de structures en béton). Elle a été utilisée pour étudier l’activité de corrosion dans le béton armé (Jasniok, 2013; Jolivet et al., 2007; Castela et al., 2014), détecter le moment de la fissuration, le nombre approximatif et l’emplacement des fissures à la surface du béton (Pour-Ghaz and Weiss, 2011), évaluer les propriétés électriques des traitements de surface sur le béton (Syropoulou and Buenfeld, 2005), déterminer la migration de chlorures dans des échantillons de mortier (Loche et al., 2005), surveiller les changements de la microstructure lors d’une expérience de migration ionique dans le béton (Sanchez et al., 2008), suivre les produits d’hydratation des mortiers de ciment Portland (Cruz et al., 2013) et étudier le comportement de la carbonatation du mortier de ciment (Dong et al., 2014). Ce projet propose la méthode PPS pour la caractérisation du développement de la RAS; elle est considérée comme une technique non destructive et non invasive dont la réponse peut refléter la microstructure des matériaux et les réactions chimiques modifiant ses composants. Le potentiel de cette méthode spectrale a été estimé pour la détection précoce du gel de la RAS affectant l’EDL qui se forme autour et à l’intérieur des granulats en présence de la solution interstitielle (Prezzi et al., 1997).

1.2 Hypothèse

L’hypothèse de travail a reposé sur le fait qu’au cours du développement de la RAS dans le béton, il existe une relation significative entre les comportements électriques (polarisation et conductivité de surface spécifique aux interfaces grain-électrolyte), chimiques (composition du gel, solution interstitielle), pétrographiques (fissuration, gel, auréoles foncées périphériques), physiques (porosité, densité, masse) et mécaniques (vitesse ultrasonore, expansion, résistance à la compression, module d’élasticité). Cette hypothèse a été formulée afin de valider le

potentiel de la PPS à estimer le degré d'avancement de la RAS et de distinguer les réponses électrochimiques de la microstructure complexe du béton (réactif et non réactif). Celle-ci repose sur les effets capacitifs aux interfaces (polarisation de la double couche électrique) ainsi que de la production du gel et la modification de la structure du béton (microfissures, connectivité des pores, etc.). Bien qu'aucune étude n'ait été tentée dans le cas de la RAS, on s'attend à avoir une sensibilité de la méthode face à cet endommagement.

1.3 Objectifs de la recherche

1.3.1 Objectif général

L'objectif général de la thèse consiste à évaluer la capacité de la PPS à détecter de manière non destructive et non invasive la réaction alcali-silice (RAS) à un stade précoce (avant l'apparition de fissures) du développement dans le béton.

1.3.2 Objectifs spécifiques

Les objectifs spécifiques sont les suivants :

1. Établir les signatures spectrales de résistivité complexe de bétons affectés ou non par la RAS et suivre leur évolution dans le temps.
2. Évaluer la faisabilité de la méthode de la polarisation provoquée spectrale (PPS) pour surveiller le développement de la RAS au niveau de la double couche électrique (EDL).
3. Proposer un modèle électrochimique conceptuel à partir des résultats des distributions des temps de relaxation et des paramètres d'intégration de décomposition de Debye afin d'estimer l'évolution de chargeabilité liée à l'avancement de la RAS.
4. Évaluer la relation possible entre les réponses de résistivité électrique complexe et d'autres propriétés obtenues par des méthodes non-destructives et destructives qui mettent en évidence le développement de RAS.

1.4 Méthodologie appliquée

La démarche expérimentale adoptée dans ce travail est présentée de manière schématique dans l'organigramme présenté à la figure 1.3. Toutes les mesures non destructives et destructives ont été effectuées sur les échantillons constitués de douze cylindres en béton réactif (RC) et de douze cylindres témoins (considérés initialement comme non réactifs; NRC) (76 mm × 190 mm) qui ont été suivis pendant 22 à 26 semaines.

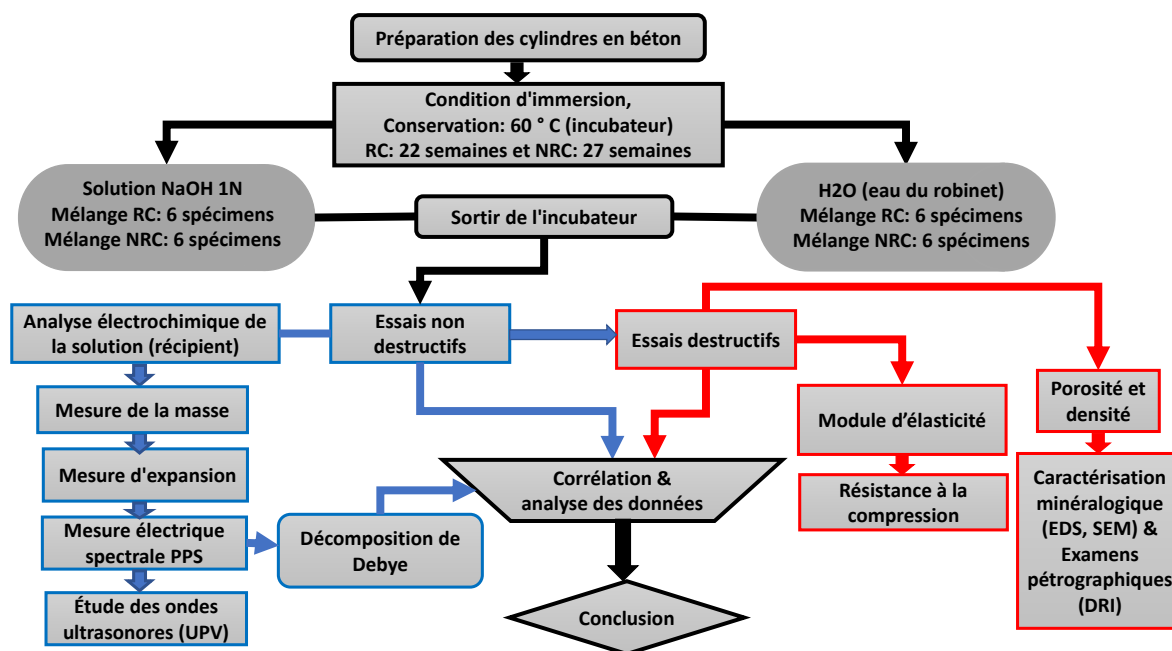


Figure 1.3 Démarche expérimentale appliquée pour les mesures de laboratoire.

La fabrication des échantillons a été réalisée au département de génie civil de l'Université de Sherbrooke ; les échantillons ont été livrés 24 heures plus tard au Laboratoire de géophysique à Polytechnique de Montréal pour effectuer les mesures. Les essais mécaniques (résistance à la compression, module d'élasticité) ont été réalisés au laboratoire de structures du génie civil de l'École Polytechnique. Les analyses par microscopie électronique et minéralogiques ont été faites au Centre de Caractérisation Microscopique des Matériaux à École Polytechnique de Montréal (Le CM^2) et à l'université de Sherbrooke (CCM). Les échantillons de chaque groupe de béton (RC-NaOH, RC-H₂O, NRC-NaOH, NRC-H₂O) ont été suivis pour les mesures non destructives (résistivité complexe, expansion, masse, UPV) jusqu'à leur destruction lors des essais mécaniques (module d'élasticité, résistance à la compression). Les mesures de densité et de porosité, ainsi que les examens minéralogiques et pétrographiques ont été effectués par la suite. Une fois les mesures de résistivité complexe réalisées, les données PPS sont ajustées à un modèle de décomposition de Debye pour déterminer la distribution des chargeabilités en fonction du temps de relaxation, et la résistivité DC. De ces paramètres intégrateurs, on peut tirer la chargeabilité totale et les temps de relaxation moyens. Cet ajustement des réponses calculées à celles observées (mesurées) a été obtenu à l'aide d'une approche stochastique (inversion par inférence bayésienne des paramètres PPS) suivant un code écrit en langage

Python, développé et publié par (Bérubé et al., 2017a). La composition des mélanges de béton, la préparation des échantillons et les autres détails relatifs au protocole de mesure (porte-échantillon, configuration des électrodes, calibration) qui ont été soumis à la condition accélérée de laboratoire (saturation, 60°C) seront décrits en détail dans les chapitres 4 et 5.

1.5 Plan de thèse

Cette thèse comporte sept chapitres suivants l'introduction :

1. Le chapitre 2 présente une revue exhaustive tirée de la littérature et l'état de l'art qui s'attacheront aux principaux thèmes de la thèse ; tout d'abord présenter ce qu'est la réaction alcali-silice et expliquer le rôle, leurs modèles théoriques et chimiques, et les propriétés du béton (physique, mécanique, électrique) pouvant être influencés par la RAS. Le concept de la polarisation provoquée spectrale sera ensuite introduit, ainsi que la double couche électrique et le modèle de décomposition de Debye pour la caractérisation des réponses électrique complexe.
2. Le chapitre 3 présente la démarche de l'ensemble du travail de recherche basé sur les trois articles (chapitres 4, 5 et 6) qui offre un résumé des éléments les plus importants et les objectifs spécifiques pour chaque article.
3. Le chapitre 4 présente l'article publié dans la revue Construction and Building Materials avec le titre "Measuring electrical properties of mortar and concrete samples using the spectral induced polarization method : laboratory set-up".
4. Le chapitre 5 présente l'article soumis pour publication dans la revue Construction and Building Materials avec le titre "Non-destructive non-invasive assessment of the development of alkali-silica reaction in concrete by spectral induced polarization : evaluation of the complex electrical properties".
5. Le chapitre 6 présente l'article soumis pour publication dans la revue Cement and Concrete Research avec le titre "Laboratory characterization of concrete affected by accelerated alkali-silica reaction : validation of complex electrical properties".
6. Les chapitres 7 et 8 sont consacrés à la discussion finale sur les résultats principaux de cette étude, à la conclusion et aux recommandations pour de futurs travaux.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 Réaction alcali-silice

La réaction alcali-silice (RAS) est un des problèmes de durabilité les plus fréquents dans de nombreuses structures en magenta béton, qui contribue à leur dégradation prématurée. La RAS fait intervenir les quatre constituants du béton : le squelette, le granulat, la pâte de ciment hydratée et la solution interstitielle. Cette réaction chimique se forme entre le granulat contenant la silice amorphe (réactive) et les ions hydroxylés et alcalins de la solution interstitielle du béton (pH élevé ≈ 14) dans un environnement suffisamment humide (70 à 80% d'humidité relative) (Figure 2.1).

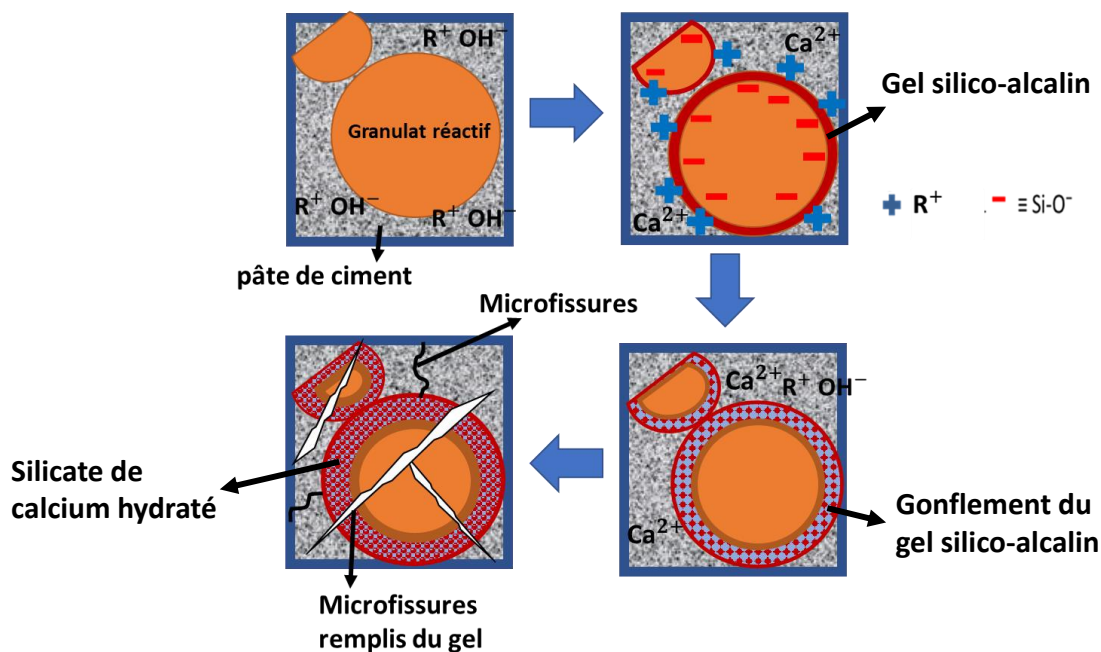


Figure 2.1 Mécanisme de fissuration induite par la RAS dans le béton.

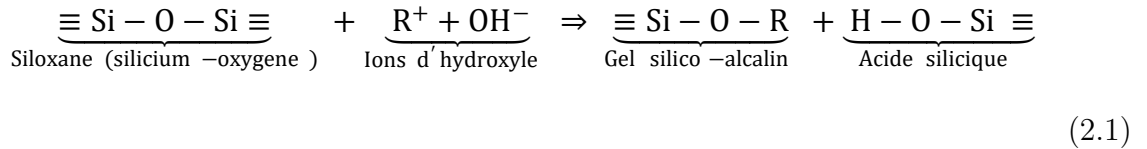
Le produit de cette réaction est un gel qui peut être dans un état liquide ou solide en fonction de la concentration de ses composants (sodium, potassium, calcium, l'hydroxyde, silice, etc.) (Ghanem et al., 2012; Mindess et al., 2003). De fait, ce produit (gel) n'est pas nuisible, mais il le devient par sa nature hygroscopique. Lorsque le gel absorbe l'humidité il gonfle, ce qui induit à des contraintes de traction dans le béton. Enfin, ces forces excèdent la résistance

à la traction du béton et les fissures se produisent (Figure 2.1). Ces fissures sont comme des passages ouverts pour d'autres produits chimiques (ions chlorures, ions sulfates, etc.) qui finalement attaquent la matrice du béton conduisant à plus d'endommagement. Comme nous le verrons ci-après, il existe des modèles chimiques sur les mécanismes réactionnels locaux.

2.2 Analyse des modèles réactionnels

Les silicates amorphes sont composés d'un empilement de tétraèdres de silicium et d'oxygène (SiO_4). La structure de la silice amorphe (dioxyde de silicium, SiO_2) est ouverte. Également, il contient des défauts dans le réseau et une grande surface spécifique. Donc, plus la surface disponible est grande, plus sa réactivité augmente avec la phase aqueuse (l'eau interstitielle) (Prezzi et al., 1997). Il existe des nombreux modèles simplifiés qui servent à décrire la réaction de la RAS (Ichikawa and Miura, 2007; Powers and Steinour, 1955). Le déroulement de cette réaction se produit comme suit (Saouma et al., 2015a) :

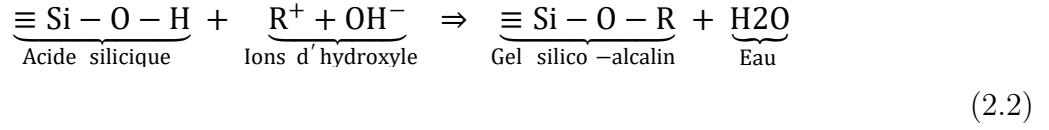
1. Au départ, le siloxane (Si-O-Si) qui est constitué d'un atome d'oxygène entouré de chaque côté par un atome de silicium (Si), est attaqué par l'ion d'hydroxyle (R^+, OH^-). À la suite de cette réaction, il y a d'une part, une hydrolyse de la silice réactive (siloxane) en absorbant des ions OH^- . Celle-ci forme un gel d'alcali-silice. D'autre part, dans cette réaction d'hydrolyse, le fluide interstitiel avec le pH élevé réagit avec des liaisons Si-O-Si pour former l'acide silicique (liaison de silanol) et du gel (silico alcalin). Il est à noter que par rapport à la pâte de ciment, les agrégats réagissent très lentement par ce qu'ils sont denses et relativement imperméables.



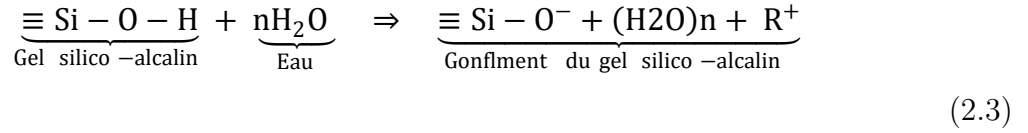
Dans cette formule chimique, R^+ représente un ion alcalin tel que Na^+ ou K^+ .

2. En effet, la structure ionique de l'acide silicique est faible. Donc, il peut réagir immédiatement avec les ions d'hydroxyle libérant de l'eau. Par conséquent, les ions chargés négativement (SiO^-) sont formés et peuvent être équilibrés par des ions mobiles de sodium, de potassium et de calcium dans la solution interstitielle pour reproduire le

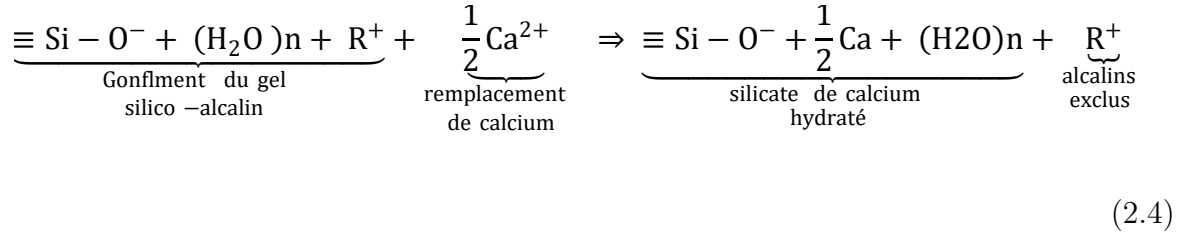
gel d'alcalis-silice :



En effet ce gel de silicate alcalin est hydrophile et il peut se dilater en présence d'eau :

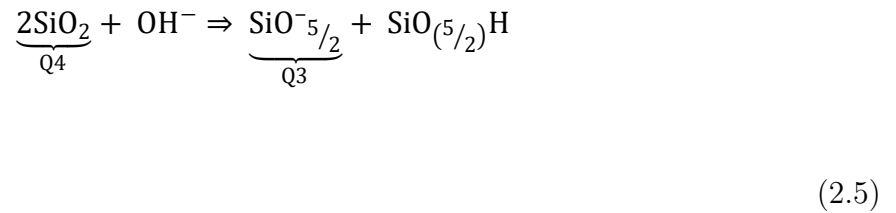


3. La fin de la réaction alcali-silice peut être très lente en raison d'échange ionique par la diffusion mutuelle entre les alcalis dans un gel de la RAS et le calcium dans la pâte de ciment. Ceci peut conduire à la conversion du gel expansif de la RAS en un gel non expansif de silicate de calcium (C-S-H).



Selon les travaux de Bulteel et al. (2002), le mécanisme de la RAS est décrit par deux étapes principales :

1. La formation des tétraèdres Q_3 par l'attaque des ions hydroxyles sur les tétraèdres Q_4 :



Dans cette formule, le SiO_2 représente Q_4 qui correspond à un tétraèdre SiO_4 constitué de 4 liaisons siloxanes. Le $\text{SiO}^{-5/2}$ représente le tétraèdre Q_3 qui est constitué de 3 liaisons siloxanes et d'un atome d'oxygène non lié à un silicium (Figure 2.2).

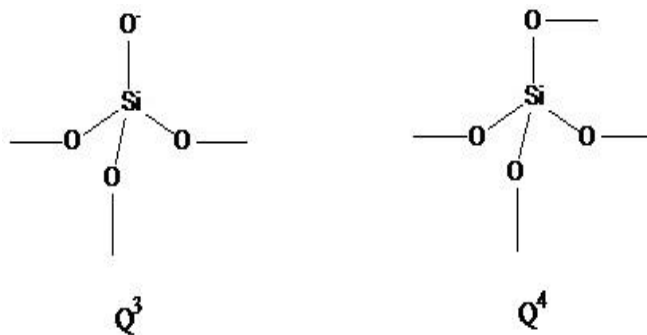
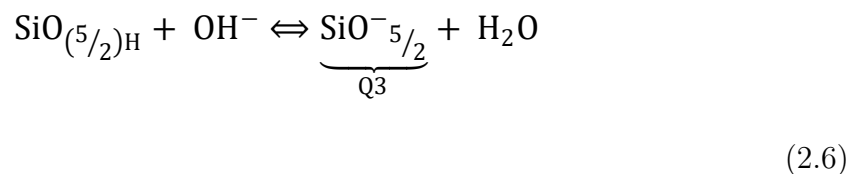
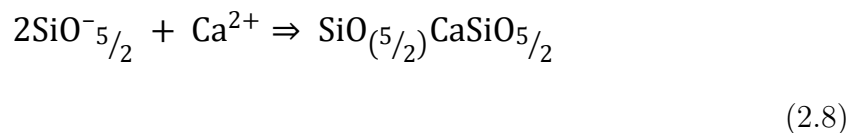
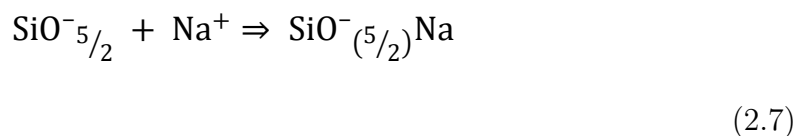


Figure 2.2 Structures de $\text{SiO}_4(\text{Q}_4)$ et $\text{SiO}_{5/2}^-(\text{Q}_3)$.

L'équation chimique suivante présente la neutralisation de ces sites Q3, la rupture d'une liaison siloxane induit la formation de deux types des tétraèdres Q3. En fonction du pH, les sites Q3 sont soit sous forme ionisée soit sous forme protonée :

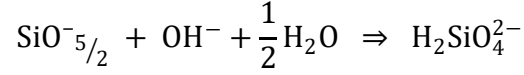


En contact avec une solution alcaline, les sites de Q3 chargés négativement peuvent être balancés par les cations de Na^+ et Ca^{2+} :



2. Dissolution de la silice : Des ions de silice tétraèdres Q_0 sont formés par l'attaque continue des ions hydroxyles sur les sites Q3. En effet, ce tétraèdre Q_0 correspondant à la silice dissoute sous forme de monomère avec 4 oxygènes non liés à un silicium. En

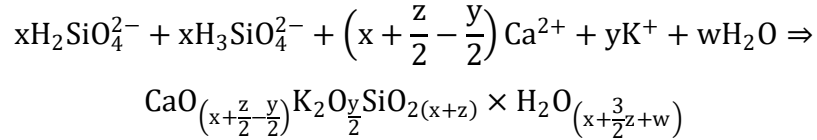
milieu basique, on distingue plusieurs types de monomères Q_0 en solution : $H_2SiO_4^{2-}$, $H_3SiO_4^-$ et $H_3SiO_4^-$.



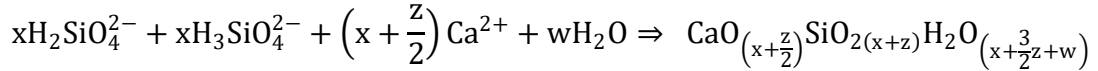
(2.9)

Il est à noter que dans ce schéma réactionnel, le passage d'un tétraèdre Q_3 à un tétraèdre Q_0 est considéré comme immédiat. Les analyses ont montré l'absence de tétraèdres Q_1 et Q_2 dans un granulat silex soumis à la RAS (Monnin, 2005).

Par la suite, la précipitation des ions de silice est générée sous forme de C-S-H (Équation 2.10) et ou des phases de C-K-S-H (équation 2.11) par les cations de la solution interstitielle du béton.



(2.10)



(2.11)

En considérant ces modèles chimiques, il est possible de conclure que la formation d'un site Q_3 et la dissolution de silice sont contrôlées par la diffusivité d'ions de l'hydroxyle dans les grains réactifs et par l'absorption de ces ions sur leurs surfaces. La diffusivité de l'hydroxyle augmente avec le pH et la force ionique de la solution. Il convient de noter que pour un pH et une force ionique constante, l'absorption de l'hydroxyle diminue avec l'augmentation de la taille du cation hydraté (Monnin, 2005). D'après le mécanisme proposé par Chatterji (2005), les ions sodium et potassium pénètrent plus facilement dans le granulat que les ions calcium en raison de la petite taille de leurs rayons ioniques. Donc les ions calcium précipitent avec les ions silicates pour former la barrière de diffusion.

La composition chimique du gel pourrait être différente de la partie intérieure vers sa partie extérieure. Ceci pourrait être lié à des processus d'échange d'ions entre la partie siliceuse des agrégats et les hydroxydes alcalins dans la solution interstitielle du béton (Rivard et al., 2002). Selon quelques études menées sur la production du gel dans les agrégats d'opale (Brouxel, 1993; Wang and Gillott, 1991), les auteurs ont signalé les tendances suivantes qui montrent le changement de la composition chimique des agrégats réactifs vers la pâte de ciment :

- Une diminution rapide de la teneur en SiO_2 dans les agrégats réactifs suivis d'une diminution lente dans la pâte de ciment.
- Une augmentation rapide de la teneur en CaO au contact des agrégats suivie d'une augmentation lente de sa teneur dans la partie cimentaire.
- Une teneur maximale d'alcalins (exemple ; Na, K) au milieu du gel diminue progressivement vers la pâte de ciment. De plus, la composition du gel silico-alcalin varie avec l'accroissement de la distance des agrégats réactifs (Winter, 2012) (Figure 2.3).

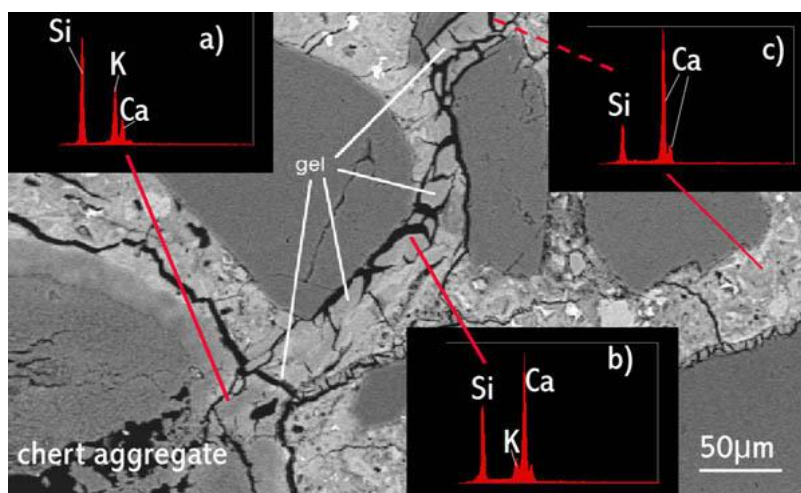


Figure 2.3 Analyse du béton par microscope électronique à balayage (MEB). La composition du gel de silice alcalin varie (diminution en silice) avec la distance à la source (agrégat réactif) et le temps (Winter, 2012).

Donc, au cours de la période de séchage/mouillage et de gel/dégel, ce processus peut être renforcé par la percolation de l'eau interstitielle contenant du Ca dans le gel préexistant de la RAS (Saouma et al., 2015a). En général, le processus de la réaction alcali-silice (RAS) peut être très similaire à la réaction pouzzolanique qui forme des C-S-H stables dans l'eau pendant l'hydratation du ciment. En effet malgré cela, il y a une différence importante entre les deux

réactions. Dans la réaction pouzzolanique, les petites particules pouzzolaniques réagissent dans un environnement riche en Ca, tandis que la RAS a lieu dans le béton mature et comprend de plus grandes particules d'agrégat. Le mécanisme de réaction pouzzolanique est considéré comme un processus dans lequel des ions de silicates sont détachés de l'agrégat réactif par des ions hydroxydes dans le fluide interstitiel. Des ions de sodium et de potassium sont les ions les plus facilement disponibles pour équilibrer les ions de silicates et puis un gel de silicate alcalin est formé. Cela peut prendre de l'eau et donc ce gel peut être mobile. Le gel de silicate alcalin est instable en présence de calcium et donc un silicate de calcium hydraté (CSH) est formé (Winter, 2012).

Concernant la différence entre les gels de chaque réaction chimique, Brough et al. (1996) ont démontré que le C-S-H coexistant avec du gel de la RAS est plus polymérisé que le CSH formé pendant l'hydratation du ciment Portland ordinaire (OPC). En effet, le produit de la réaction alcali-silice a une composition chimique complexe très variable. Diamond (2000) a conclu que la chimie du gel de la RAS est ni toujours faible, ni élevée en Ca. Mais, celle-ci peut varier d'un grain à un autre (Brough et al., 1996). Selon des résultats présentés de (Cong et al., 1993), les gels identifiés dans la RAS sont dominés par la polymérisation Q3 de silicate dans le temps où la portlandite (CH ou $\text{Ca}(\text{OH})_2$) a été consommée et puis la C-S-H polymérisée s'est formée (Brough et al., 1996; Hou et al., 2004).

2.3 Effets mécaniques et physiques de la réactivité alcali-silice

2.3.1 Viscosité du gel

Comme la propriété chimique, les propriétés physiques de gel aussi sont variables et peuvent évoluer au fil du temps. Le gel de silice est poreux avec une grande surface spécifique qui contient de nombreux groupes hydrophiles (par exemple, OH^- , O, Na, et -O-) (Hench and Clark, 1978). Pendant cette réaction chimique, les gels varient de l'état liquide (plastique) à l'état solide (rigide), principalement en fonction de leur teneur en eau et aussi en fonction de la concentration de ses composants (sodium, potassium, calcium, hydroxyde, silice, etc.) (Mindess et al., 2003; Ghanem et al., 2012). Les gels rigides sont plus susceptibles de provoquer des forces d'expansion qui conduisent à la fissuration, alors que les gels aqueux sont plus fluides qui peuvent facilement pénétrer dans les fissures (Swamy, 2002). Ce type de gel aussi a un comportement visqueux. En effet, sous des contraintes externes et internes, le gel se déplace lentement dans l'espace poreux et les fissures. Dans ce cas, ils peuvent améliorer le comportement d'hystérésis du béton. Donc, la présence du gel dans les fissures semble agir comme un amortisseur visqueux qui aura tendance à augmenter le temps de fluage du béton

(Boukari et al., 2015). Figure 2.4 présente les modifications de la composition chimique et les propriétés physico-mécaniques du gel pendant le développement de la RAS (Urhan, 1987).

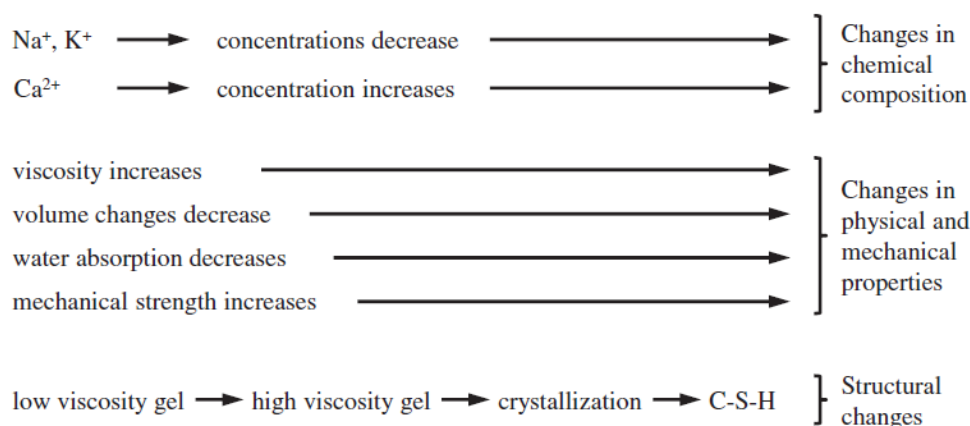


Figure 2.4 Modifications de la nature et des propriétés du gel de la réaction alcali-silice (Urhan, 1987).

Selon certaines recherches (Koch et al., 2011; Fernandes et al., 2007), cette propriété visqueuse du gel est conservée au fil du temps, même si une cristallisation partielle survient avec l'âge.

2.3.2 Propriétés mécaniques

Bien que les propriétés mécaniques du béton diminuent avec le développement de RAS, ces changements ne peuvent pas uniquement être associés à l'expansion du béton, car ils sont aussi affectés par la minéralogie, la taille des granulats, et la cinétique de la réaction (taux d'expansion) (Boukari et al., 2015). Il convient de noter que le taux d'expansion dépend de la formation d'une barrière semi-perméable constituée de silicates alcalins hydratés (immatures) entre les C-K-S-H (gels matures qui sont directement en contact avec la pâte de ciment) et le grain de silice qui forme une barrière fine et rigide. Donc, cette barrière conduit à favoriser la diffusion des alcalins (K, Na) et des ions hydroxylés de la solution dans le grain réactif (Garcia-Diaz et al., 2006). Selon Zheng et al. (2016), le module d'élasticité du silicate de calcium alcalin (auréole foncée périphérique autour du granulat réactif) dépend du rapport Ca/Si du gel. Cette étude a montré que plus le calcium était disponible, plus le module d'élasticité était élevé. Selon les études présentées par Fujii et al. (1987) et par Multon et al. (2005), la résistance à la compression du béton pourrait être affectée à divers degrés par la RAS. Néanmoins, cette propriété est plus ou moins affectée par des paramètres tels que

le facteur de confinement, le temps d'exposition, et la température (Liu et al., 2014). La résistance à la compression n'est pas considérée comme un bon indicateur des dommages causés par la RAS pour le béton affecté avec une faible expansion (Fournier et al., 2010). En revanche, le module d'élasticité (module de Young) est un indicateur représentatif de l'endommagement associé à la RAS. Cette propriété mécanique diminue considérablement lors de la première apparition de fissures (Mohammed et al., 2004; Jones and Clark, 1996; Chana and Thompson, 1992; Ahmed et al., 2003). Selon Marzouk and Langdon (2003), pour les échantillons entreposés à 38°C et à 100% H.R., une baisse de la résistance à la compression a été observée de 28% à 14 jours tandis qu'elle est de 80% pour le module de Young.

Dans les études sur le béton, des chercheurs ont développé des modèles théoriques pour la prédiction des relations entre la vitesse ultrasonore et les propriétés physico-mécaniques telles que le module d'élasticité, la résistance à la compression, la densité, la porosité et la perméabilité. D'autres travaux ont rapporté une corrélation entre les vitesses d'impulsion et les caractéristiques du mélange cimentaire, tels que le rapport eau/ciment, la granulométrie globale, le processus d'hydratation et les effets de la température de durcissement (Panzera et al., 2004).

La vitesse de l'onde élastique varie en fonction notamment de la densité du matériau. Celle-ci permet d'avoir une estimation de la porosité et de la détection de discontinuités. Dans ce cas, la caractérisation de la vitesse de propagation peut être très sensible à la microfissuration du béton si le développement de la RAS est bien développé (Swamy and Al-Asali, 1988; Fournier and Bérubé, 2000; Ahmed et al., 2003). Par contre, selon Saint-Pierre et al. (2007), la vitesse d'impulsion ultrasonique ne montre aucune évolution de la RAS et reste constante après une expansion supérieure à 0,09%. Boukari et al. (2015) ont noté seulement une baisse de 8% de la vitesse des ondes ultrasonores pour les échantillons réactifs et également une augmentation de 2% pour les échantillons non réactifs. Basé sur les résultats présentés par Ahmed et al. (2003), les deux mélanges réactifs (Mix A, Mix B) ont montré des modules d'élasticité plus faibles que celui de mélanges-témoins (Mix C) (Figure 2.5).

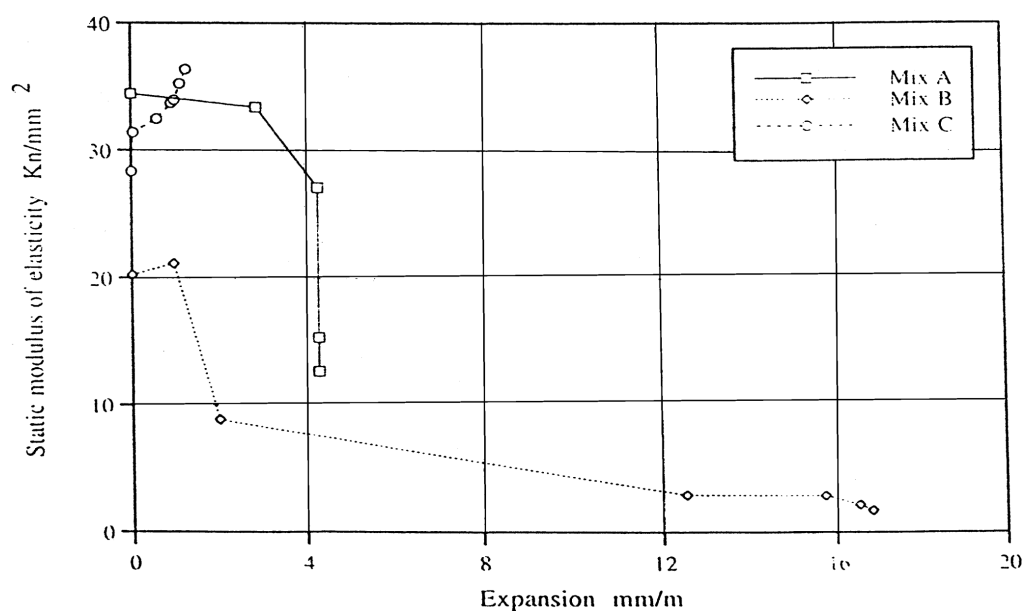


Figure 2.5 Variation du module d'élasticité du mélange témoin (Mix C) et des mélanges réactifs (Mix A ; sable de Thames Valley, Mix B ; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003).

Selon cette étude, l'augmentation de la vitesse des ondes (UPV) du mélange B était plus rapide et forte que celle du mélange A. Dans ce cas, les résultats ont montré les comportements différents de l'UPV pour deux types de mélanges réactifs (Mix A et B) (Figure 2.6). Il faut noter que les prismes coulés horizontalement présentaient une chute de UPV (vitesse) plus importante que les cylindres coulés verticalement. Ceci est dû à la plus grande expansion qui se produit dans la direction longitudinale parallèle à la direction horizontale de la distribution, ce qui conduit à une vitesse de l'onde plus élevée (Figure 2.6).

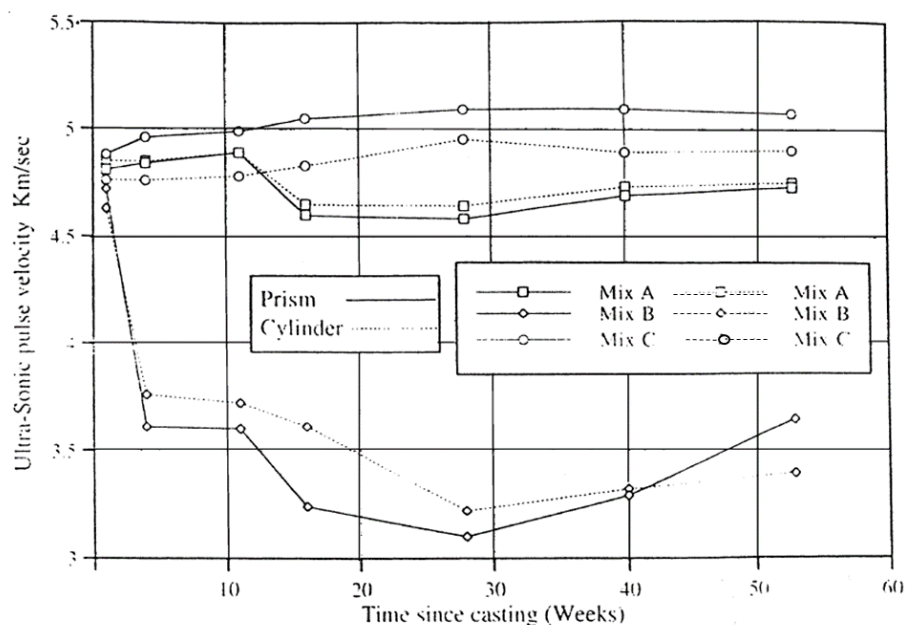


Figure 2.6 Variations de vitesse ultrasonore du prisme (100 x100 x 500 mm³) et du cylindre (150 x300 mm²) en fonction du temps. Mix C : mélange témoin, Mix A et Mix B : mélanges réactifs (Mix A ; sable de Thames Valley, Mix B ; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003).

Concernant la mesure de la résistance à la compression (Figure 2.7), malgré la diminution de Mix B en fonction de l'expansion, aucune variation significative n'est observée pour Mix A (mélange réactif). Ahmed et al. (2003) ont également noté deux périodes d'augmentation de la résistance à la compression pour le mélange A, la première était pendant les 8 premières semaines, la deuxième était après une année. Cette reprise en force pourrait être due à l'hydratation continue du ciment et/ou au remplissage des fissures par le gel de la RAS. En revanche, la résistance à la compression et l'UPV n'ont pas présenté une sensibilité similaire à la RAS pour ces deux mélanges réactifs. A cet égard, il convient de noter que les propriétés mécaniques du béton peuvent être influencées par le type d'agrégat réactif.

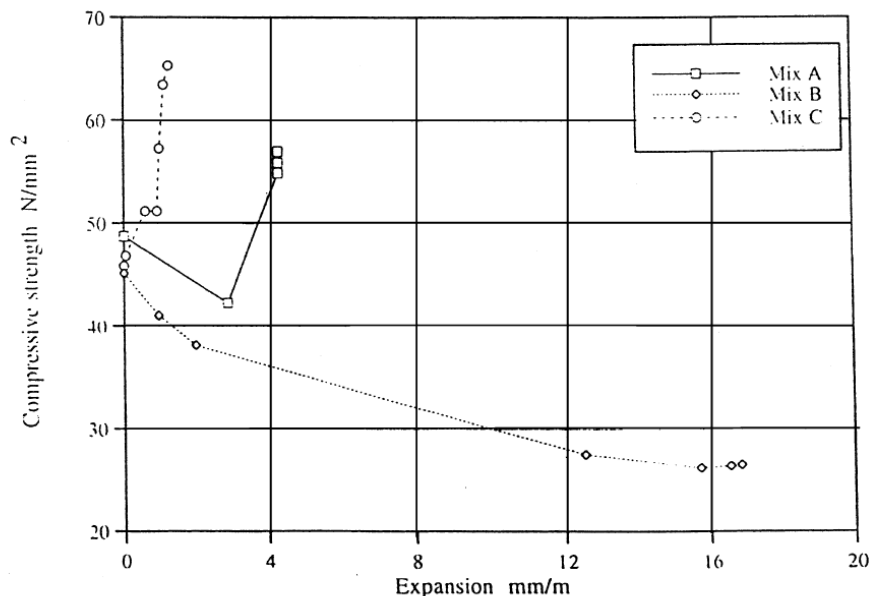


Figure 2.7 Résistance à la compression en fonction de l'expansion du mélange témoin (Mix C) et des mélanges réactifs (Mix A ; sable de Thames Valley, Mix B ; sable de Thames Valley + silice fondue + calcaire broyé) (Ahmed et al., 2003).

2.3.3 Variation de masse volumique

La variation de la masse volumique du béton dépend de certains éléments physiques de la microstructure pendant la réaction alcali-silice. Lorsque la RAS n'est pas encore commencée, le squelette du béton contient le mélange des agrégats (qui n'ont pas encore réagi) et les produits d'hydratation. Puis, au cours de la RAS, une proportion de la masse des agrégats se transforme en masse de gel de façon graduelle. Bangert et al. (2004) ont présenté un modèle basé sur l'idée que la formation d'un gel est amorcée à la surface des agrégats et progresse à partir de cette surface vers l'intérieur des particules dans la matrice du béton. La figure 2.8 illustre le changement de fraction volumique ϕ^S dans le squelette du béton pendant la réaction alcali-silice ; pour $t = 0$, le squelette n'est pas affecté par la RAS, correspondant à la fraction volumique du matériau qui n'a pas réagi (couleur gris clair). À l'instant $t > 0$, le squelette du béton est considéré comme un mélange de la partie des agrégats non affectés, du gel par la RAS et des produits d'hydratation. Dans le même temps, l'espace des pores est uniquement saturé de la masse de liquides (ϕ^l) et des pores remplis du gaz (ϕ^g). Selon le modèle proposé par Bangert et al. (2004) (Figure 2.8), la fraction volumique de squelette partiellement affectée par la RAS (couleur gris foncé) a été considérée comme un mélange binaire d'une

partie non affectée (ϕ^u) et une partie affectée par la RAS (ϕ^r) :

$$\phi^S = \phi^u + \phi^r \quad (2.12)$$

ϕ^u est la fraction volumique de la partie qui n'a pas réagi, ϕ^r est la fraction volumique de la partie qui a réagi et gonflé (gel).

Enfin, pour $t \rightarrow \infty$, le squelette a complètement été converti en gel (partie gris foncé) ; dans ce cas, la fraction volumique du squelette est considérée comme la fraction volumique de la partie affectée par la RAS (ϕ^r).

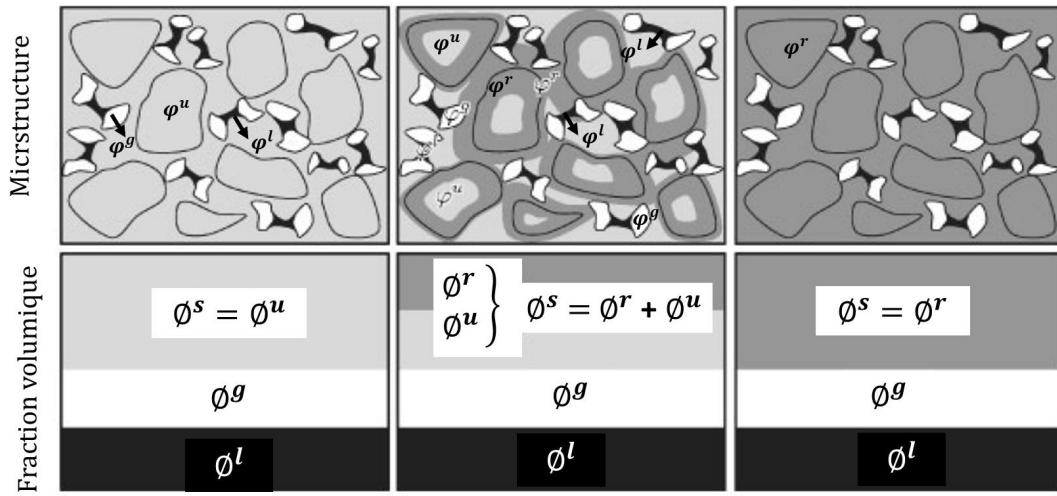


Figure 2.8 Constituants de la microstructure et fractions volumiques du béton (considéré comme un milieu poreux partiellement saturé). S masse du squelette du béton. ϕ^u : fraction volumique de phase non-affectée, ϕ^S : fraction volumique de phase affectée par la RAS. ϕ^l : fraction volumique de liquide (l) . ϕ^g fraction volumique du gaz. ϕ : masse (Bangert et al., 2004).

Également, la densité partielle du squelette (ρ^S) peut être définie en fonction de la densité de matériau (ϱ^S) et la fraction volumique (ϕ^S). Cette densité est supposée d'être composée d'une partie non-affecté (r) et d'une partie affectée (u) par RAS.

$$\rho^S = \phi^S \varrho^S = \phi^u \varrho^u + \phi^r \varrho^r \quad (2.13)$$

Dans le cadre d'étude des densités de matériaux réactifs et non-réactifs, cette relation assume :

$$\varrho^u > \varrho^r \quad (2.14)$$

En considérant cette équation, pendant la formation non instantanée du gel qui est présentée par l'échange de masse entre φ^u et φ^r , le rapport de ϱ^u/ϱ^r présente une augmentation de volume du gel par absorption de l'eau. Il convient de noter que, ce rapport et la quantité d'eau absorbée par le gel dépendent fortement de la teneur en humidité du béton. Selon l'équation 2.13, étant donné que les densités des parties réactive ϱ^r et non réactive ϱ^u sont différentes, la variation de la fraction volumique ϕ^u et ϕ^r conduit à avoir une variation de la densité des matériaux (ϱ^S) (cf. équation 2.12 et 2.13). Par conséquent, le gonflement induit dans le béton par la production du gel de RAS est associé à la variation de la densité des matériaux dans le squelette du béton (ϱ^S). Pendant la formation du gel de la réaction alcali-silice, la première étape est reliée à la formation d'un gel amorphe qui est dépendante d'humidité, dans cette étape où plusieurs réactions chimiques adéquates sont intégrées. La seconde étape est un processus instantané de la combinaison d'eau où la capacité de cette combinaison du gel hydraté est altérée par l'effet de vieillissement. En effet, le vieillissement est la perte de la capacité de gonflement du gel (Steffens et al., 2003). Dans ce cas, le gonflement du matériau est lié à l'augmentation de volume du gel amorphe (ν_p) au cours de la combinaison de l'eau qui peut être supérieure à l'espace de pores disponible dans le béton (ϕ^0). Autrement dit, le gonflement du béton par le gel est le résultat de l'augmentation de volume de produits de cette réaction par rapport au volume initial des réactifs. En négligeant les autres produits précipités de réactions chimiques dans le béton, la masse totale du gel gonflé (m_p) est constituée de la masse de gel amorphe (m_g) et de la masse d'eau (m_w) :

$$m_p = m_g + m_w \quad (2.15)$$

En supposant que l'augmentation du volume du gel est contrôlée par la masse de l'eau (m_w), et que la contribution de gel amorphe étant négligée, l'augmentation de la masse du gel gonflé est donnée par :

$$\Delta m_p = m_w \quad (2.16)$$

Donc, dans ce cas, la densité des produits (ϱ_p) est considérée comme constante, et son volume

(ν_p) augmente avec du temps :

$$\Delta\nu_p = \frac{\Delta m_p}{\varrho_p} = \frac{m_w}{\varrho_p} \quad (2.17)$$

Selon Steffens et al. (2003), dans les premiers jours du développement de cette réaction, le gel gonflé remplit les espaces libres et les espaces poreux connectés. Dans ce cas, le teneur du volume du gel ($\Delta\nu_p$) est moins que la fraction volumique du béton (ϕ_0) et donc il n'y a pas de gonflement du béton. Mais dès que le gel gonflé remplit tout l'espace poreux disponible, la déformation (expansion) du béton s'est produite (Figure 2.9).

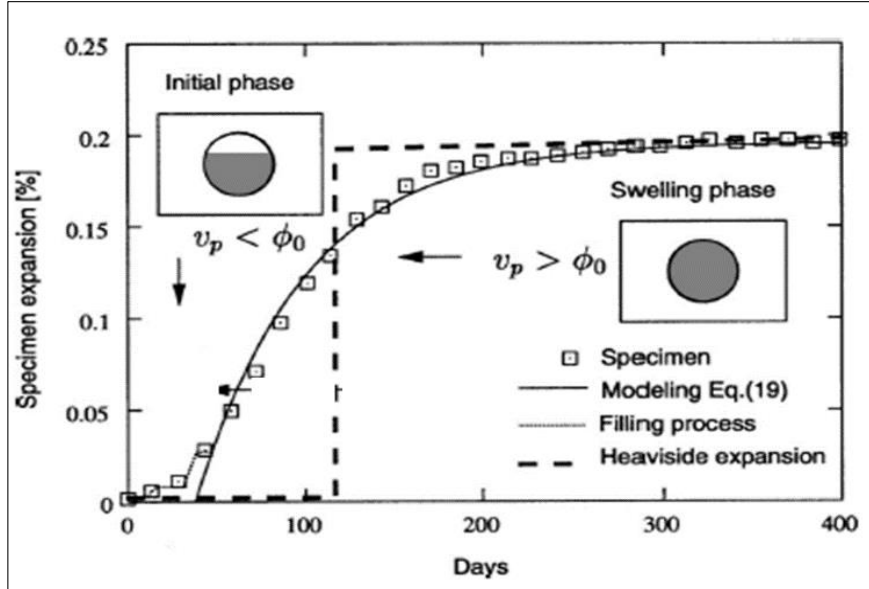


Figure 2.9 Expansion observée et prévue de l'échantillon de béton (Steffens et al., 2003; Larive, 1997)

Si pendant ce temps, il y a une période de séchage, le béton commence à perdre sa masse en raison de la diminution de la masse d'eau (m_w), ceci conduit à avoir une variation négative. Également, dans ce cas, la dilatation s'arrête et la variation de la masse volumique (densité) du béton devenir négative. Cette raison théorique est appuyée par une observation réelle (Figure 2.10) présentée dans le travail de Multon et al. (2005). Les résultats ont montré une variation négative de masse associée aux échantillons qui n'ont pas été parfaitement couverts sous la condition de 30% d'humidité.

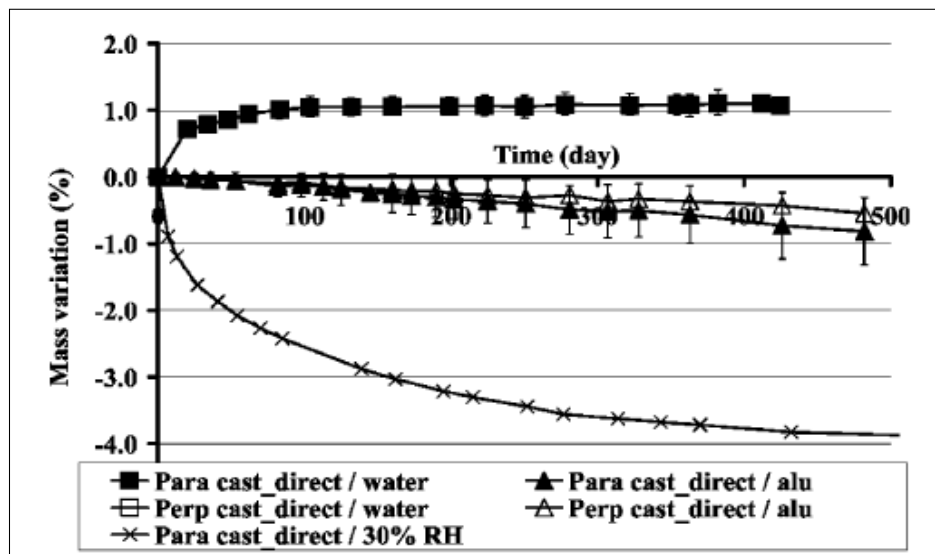


Figure 2.10 Variation de masse (Multon et al., 2005).

2.4 Propriétés électriques du béton

La microstructure de béton a une importance considérable, car elle contrôle les propriétés mécaniques et la durabilité du béton. Donc celle-ci peut avoir une influence significative sur sa performance. En général, le béton présente une structure hétérogène qui est composée principalement des granulats et de la pâte du ciment, ainsi que de nombreux vides de différentes dimensions. La pâte de ciment elle-même est également une composition complexe d'un réseau des cavités capillaires et de gel C-S-H. Donc, en appliquant une méthode électrique, la conduction du courant à travers ce système peut prendre plusieurs chemins avec des caractéristiques différentes (Karhunen et al., 2010). D'après Song (2000), le courant électrique peut prendre principalement trois chemins : (1) chemins conducteurs continus (CCC), chemins conducteurs discontinus (CCD), et chemins isolants (CI). Selon cet article, les CCC sont les micropores connectés en continu qui pourraient être une série de cavités capillaires reliées à travers les pores. Les micropores discontinues dans le béton forment le CCD dont la continuité est bloquée par les couches de pâte de ciment. Les pores discontinus peuvent également être connectés à des pores continus. La matrice continue du béton, qui est composé des particules de pâte du ciment, agit comme les chemins isolants électriquement (CI) dans la microstructure (Figure 2.11).

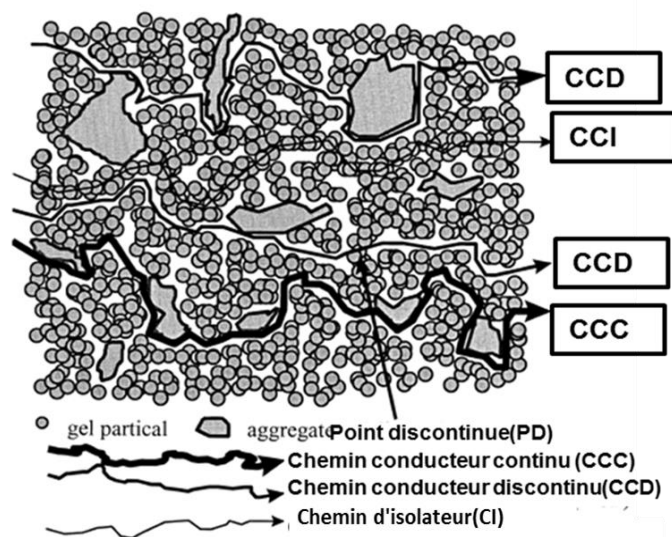


Figure 2.11 Représentation schématique de la microstructure du béton (Song, 2000).

En général, dans le cadre de la mesure de spectroscopie d'impédance électrique (SIE) ou autrement dit la polarisation provoquée spectrale (PPS), le béton présente les effets capacitifs et d'impédance qui sont typiquement caractérisés par deux arcs semi-circulaires appelés arc de masse (bulk arc en anglais) et arc d'électrode (Figure 2.12).

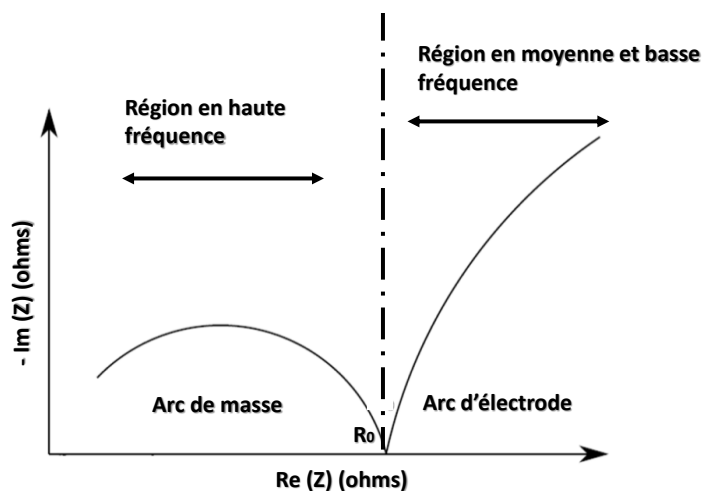


Figure 2.12 Diagramme de Nyquist de la réponse complexe pour un matériau cimentaire. Im : partie imaginaire, Re : partie réelle. Modifié de Perron and Beaudoin (2002) et de Sun et al. (2017).

Le développement de l'arc de masse (typiquement au-dessus de 1 kHz) est le résultat du comportement capacitif en raison des effets de polarisation dans la structure des pores du béton. En effet, il existe une accumulation d'ions dans les zones de restriction des chemins discontinus (CCD) et dans le col de pores qui contribue à la réponse capacitive. Dans les fréquences plus faibles (typiquement inférieures à 1 kHz), le développement de l'arc d'électrode est le résultat des effets capacitifs de l'interface (polarisation de la double couche électrique) entre l'électrode de mesure et le béton (ou pâte de ciment). La résistance apparente (R_0) est donc déterminée par l'endroit où l'axe réel et l'arc à basse fréquence se croisent (Perron and Beaudoin, 2002; Sun et al., 2017).

2.5 Polarisation provoquée spectrale

Dans les dernières années, la méthode de spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE) s'est révélée être une technique non destructive prometteuse pour sa capacité à mettre en évidence la microstructure du béton (Song, 2000; Syropoulou and Buenfeld, 2005; Loche et al., 2005; Jolivet et al., 2007; Sanchez et al., 2008; Pour-Ghaz and Weiss, 2011; Cruz et al., 2013; Jasniok, 2013; Castela et al., 2014). En pratique, cette méthode consiste à injecter un courant alternatif de type sinusoïdal dans une gamme de fréquences donnée (mHz-kHz). L'injection du courant dans le matériau provoque l'apparition d'une différence de potentiel qui est également sinusoïdale, mais déphasée par rapport au courant injecté (Figure 2.13).

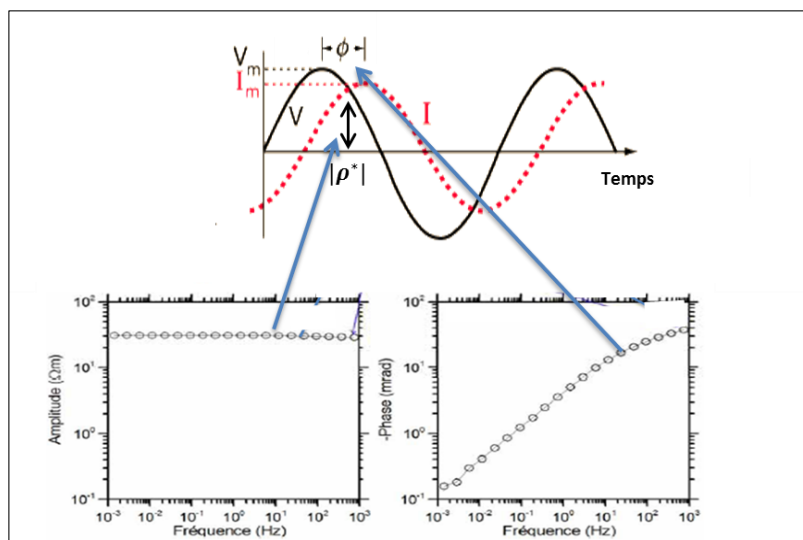


Figure 2.13 Données obtenues par la méthode de Polarisation Provoquée Spectrale (PPS). Le dessin modifiée d'après Okay Ahi (2011).

D'une manière générale, la conductivité électrique (inverse de la résistivité électrique) du béton comprend des effets de la composante ohmique de la conduction et celle de la polarisation. Celle-ci peut généralement être représentée par une quantité complexe (σ^*) qui est exprimée en termes de magnitude ($|\sigma^*|$) et de déphasage (φ) ou par les parties réelle σ' et imaginaire σ'' ou par la relation d'Euler (Revil et al., 2013) :

$$\sigma^*(\omega) = \sigma'(\omega) + i\sigma''(\omega) = |\sigma^*(\omega)| \exp(i\varphi) = |\sigma^*(\omega)| (\cos \varphi + i \sin \varphi). \quad (2.18)$$

Dans cette méthode, la conductivité électrique complexe des matériaux dépend de la fréquence angulaire (ω) qui est liée à la fréquence de mesure par la relation : $\omega = 2f\pi$. Avec i est l'unité imaginaire : $i = \sqrt{-1}$ où l'amplitude ($|\sigma^*|$) est donnée par :

$$|\sigma^*| = \sqrt{(\sigma')^2 + (\sigma'')^2}. \quad (2.19)$$

Le déphasage peut être défini par :

$$\varphi = \arctan(\sigma''/\sigma') = \arctan(\rho''/\rho'). \quad (2.20)$$

Il faut remarquer que le déphasage de la conductivité complexe est positif (si le voltage est en retard par rapport au courant injecté). Mais si la phase est celle de la résistivité complexe, elle doit être négative (Revil and Florsch, 2010). Selon la loi d'Ohm, la résistivité complexe exprimée en $\Omega \text{ m}$ (inverse de la conductivité électrique) dépend de la différence de potentiel $\Delta V^* = |V^*| \exp(-i(\omega t + \varphi))$ et le facteur géométrique K :

$$\rho^*(\omega) = K \left(\frac{\Delta V^*}{I^*} \right). \quad (2.21)$$

De plus, la conductivité électrique complexe contient des informations sur les propriétés électriques de l'échantillon sur l'intervalle de fréquence. Alors que la partie réelle (en phase) de la conductivité représente la capacité du matériau poreux à transmettre un courant électrique, la partie imaginaire (quadrature) de cette valeur complexe représente la capacité du matériau poreux à stocker les charges électriques de manière réversible (phénomènes de la polarisation) (Weller et al., 2013).

Selon le modèle suggéré par Vinegar and Waxman (1984), la partie réelle dépend principalement de la conductivité de la matrice saturée (σ_{bulk}) ainsi que de la conductivité de surface (σ'_{surf}) liée à l'interface électrolyte/solide. σ_{bulk} dépend de la conductivité de la solution dans les pores (σ_{el}) et de la microstructure, ce qui est généralement exprimé par la loi d'Archie (Archie, 1942). La partie imaginaire dépend de la conductivité de surface (σ''_{surf}) et des phéno-

mènes de polarisation au niveau de l'interface. La conductivité complexe mesurée est donnée par :

$$\sigma^*(\omega) = (\sigma_{bulk} + \sigma'_{surf}(\omega)) + i\sigma''_{surf}(\omega). \quad (2.22)$$

Où la fréquence angulaire (ω) est liée à la fréquence de mesure f de $\omega = 2\pi f$ et i est l'unité imaginaire ($i = \sqrt{-1}$). En considérant l'équation 2.22, le déphasage φ (indice des phénomènes de polarisation dans la double couche électrique) est proposé :

$$\varphi = \tan_{-1}(\sigma''_{surf}(\omega)/(\sigma_{bulk} + \sigma'_{surf}(\omega))). \quad (2.23)$$

2.5.1 Facteurs à contrôler

La figure 2.14 présente une série de facteurs externes qui peuvent influencer les résultats électriques. Donc, afin d'avoir les données exactes de mesures, il faut contrôler et modifier ces facteurs pendant la mesure PPS.

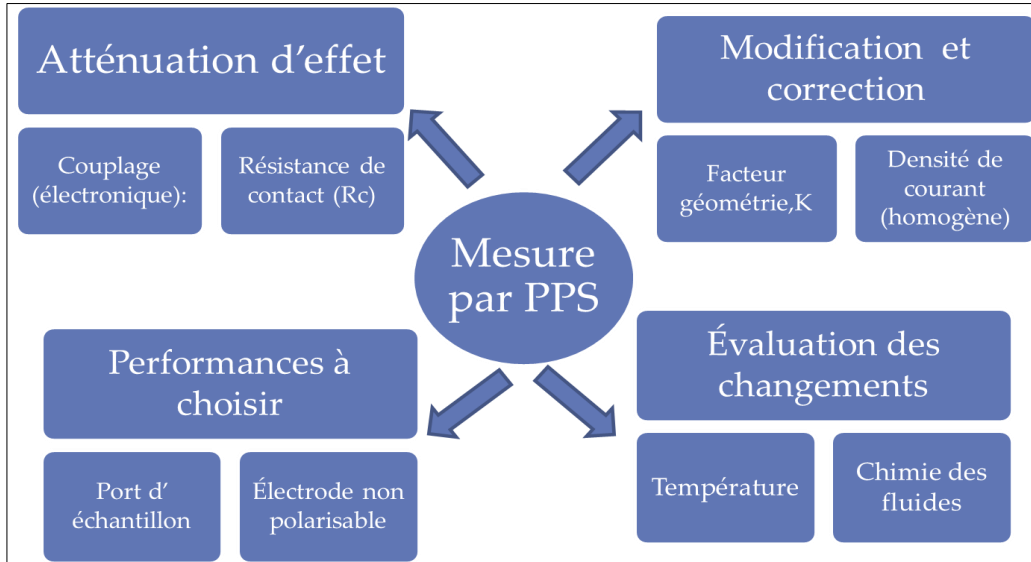


Figure 2.14 Éléments externes à contrôler pendant la mesure électrique PPS.

Dans le cadre de la mesure PPS, la réponse spectrale peut être dominée par l'effet de couplage électromagnétique. Cet effet peut dépendre de la fréquence de mesure, de la conductivité du milieu. Donc, plus ces deux paramètres sont élevés, plus le couplage EM sera important (Okay Ahi, 2011). De plus, cet effet peut se produire aussi pour des câbles longs et des résistances de contact élevées. Afin d'atténuer cet effet, il est recommandé d'utiliser les fréquences

les plus basses (typiquement inférieures au kHz), et de bien séparer les câbles d'injection des câbles de mesure (potentiel). Il faut noter que le décalage de déphasage reste négligeable avec une augmentation de la séparation entre les dipôles d'injection et ceux de potentiel, ainsi que pour des angles d'inclinaison faible (Zimmermann et al., 2008; Ford et al., 1995). La polarisation d'électrodes est aussi un facteur qui perturbe la réponse du milieu. Si le milieu génère de faibles polarisations, cette perturbation devient très importante (Okay Ahi, 2011). Dans ce cas, l'électrode de potentiel introduit un déphasage supplémentaire à cause des effets capacitifs. C'est la raison pour laquelle les électrodes non-polarisables sont généralement utilisées ; ainsi, la différence de potentiel est moindre et relativement stable (Figure 2.15) (Dahlin et al., 2002).

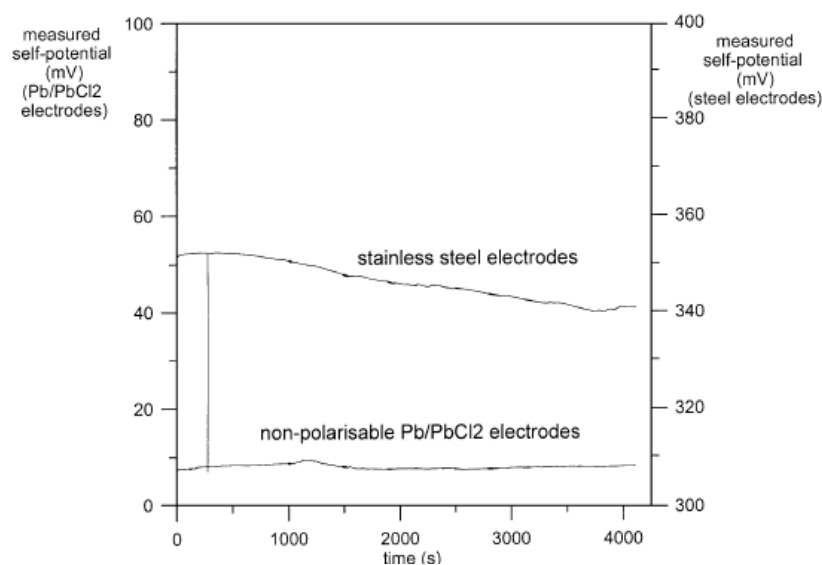


Figure 2.15 Comparaison du potentiel mesuré entre les électrodes de chlorure de plomb et en acier inoxydable (Dahlin et al., 2002).

En outre, dans la majorité des cas, la précision de phase dans un système au laboratoire dépend essentiellement des propriétés de l'instrument de mesure, du contact électrodes/électrolyte (ou électrodes/ matériau), et des propriétés de l'échantillon (Vanhala and Soininen, 1995). Pendant la mesure spectrale, la densité de courant doit être la plus faible possible afin de réduire des effets non-linéaires, et de s'assurer d'une bonne distribution uniforme du courant dans l'échantillon. Il convient de noter qu'il y a une relation inverse entre la densité de courant et l'impédance de contact qui peut provoquer une distribution de courant non homogène à la surface des électrodes de courant (Zimmermann et al., 2008). La rugosité de

l'interface d'électrode/échantillon peut causer une augmentation de l'impédance à l'interface échantillon/électrode (Vanhala and Soininen, 1995). Selon Sumner (1976), l'impédance de contact présente des effets non linéaires pour une densité de courant supérieure à 10^{-3} Am^{-2} (Sumner, 1976). Vanhala and Soininen (1995) ont noté que l'effet de polarisation provoquée d'un échantillon ne change pas pour des densités de courant variant entre de 10^{-5} à 0.2 Am^{-2} .

À titre d'exemple, l'équipement utilisé dans notre travail se compose d'une unité de polarisation provoquée spectrale SIP Fuchs III (Radic Research, Allemagne), d'électrodes de courant pour injecter un courant variable en fréquence (1.43 mHz-20 kHz) et d'électrodes de potentiel non- polarisables pour mesurer la différence de potentiel développée par le courant à travers l'échantillon. Il convient de noter qu'afin d'avoir les données les plus exactes, il faut contrôler et modifier les facteurs externes (polarisation d'électrodes, résistance de contact, densité du courant, facteur géométrique, effet de couplage) et les facteurs internes (température, saturation, salinité de l'eau interstitielle) pendant la mesure de spectroscopie d'impédance (plus de détails sur la mesure électrique au laboratoire seront donnés dans les chapitres 4 et 5).

2.6 Analyse de la double couche électrique

Les phénomènes mesurés par la méthode PPS sont généralement associés à des effets de polarisation liés à une double couche double électrochimique (Electrical Double Layer ou EDL en anglais) qui décrit la formation des charges ioniques à l'interface entre les phases du solide et du liquide. Pour la mesure PPS à basse fréquence ($f < 100 \text{ Hz}$), les réponses de polarisation du matériau peuvent être influencées par la polarisation de la membrane (constriction dans un canal de pore ou en présence de particules d'argile) et par une polarisation électrochimique des grains isolants. Des études précédentes (Vinegar and Waxman, 1984; Revil, 1999; Revil and Florsch, 2010; Revil and Skold, 2011; Revil et al., 2012; Revil, 2013) ont montré que la partie imaginaire de la conductivité de surface peut être généralement associée à des effets de polarisation liés à une couche double électrochimique (electrical double layer ou EDL en anglais) qui décrit la formation des charges ioniques à l'interface entre les phases du solide -et du liquide. Les minéraux qui sont en contact avec de l'eau peuvent développer un réseau de charges sur leur surface qui forme la double couche électrique (Figure 2.16). Cette couche comprend deux parties : (1) la couche Stern, la plus interne, constituée d'ions adsorbés et faiblement mobiles qui sont capables de se déplacer tangentiellement sur la surface de minéral en présence d'un champ électrique externe (cette couche est située entre le plan O et le plan d, le plan O correspondant à la surface du grain de minéral et le plan d correspondant à la surface intérieure de la couche diffuse électrique) ; (2) la couche diffuse contient des contre-ions (caractérisés par des charges qui sont opposées à la charge fixée sur la surface de minéral) et

co-ions (même charge) situés plus loin dans l'eau interstitielle, mais encore dans le voisinage de l'interface eau/minéral (Figure 2.16). Dans cette couche, la mobilité des ions (conductivité de surface) dépendant de la salinité et de la température de l'eau interstitielle, et ne dépend pas de la fréquence de mesure.

La conductivité de la couche Stern dépend de la fréquence et peut être liée à la partie imaginaire de la conductivité complexe. La polarisation de cette couche apparaît principalement dans les basses fréquences de 1 mHz à 100 Hz, et elle est contrôlée par la densité de charge Q_v recouvrant la surface du grain, et par la distribution granulométrique (Leroy et al., 2008; Revil and Florsch, 2010).

Lorsqu'un champ électrique est appliqué dans une zone de double couche, les cations se déplacent dans la direction du champ électrique et s'accumulent au bord du grain. Lorsque le courant injecté est arrêté, cette double couche (EDL) se décharge et puis l'équilibre ionique est rétabli par la diffusion des ions. Ceci produit une tension qui diminue de façon continue graduelle tandis que les ions retournent à leur état d'équilibre dans l'électrolyte. Ce processus donne l'effet de polarisation induite (Revil and Florsch, 2010).

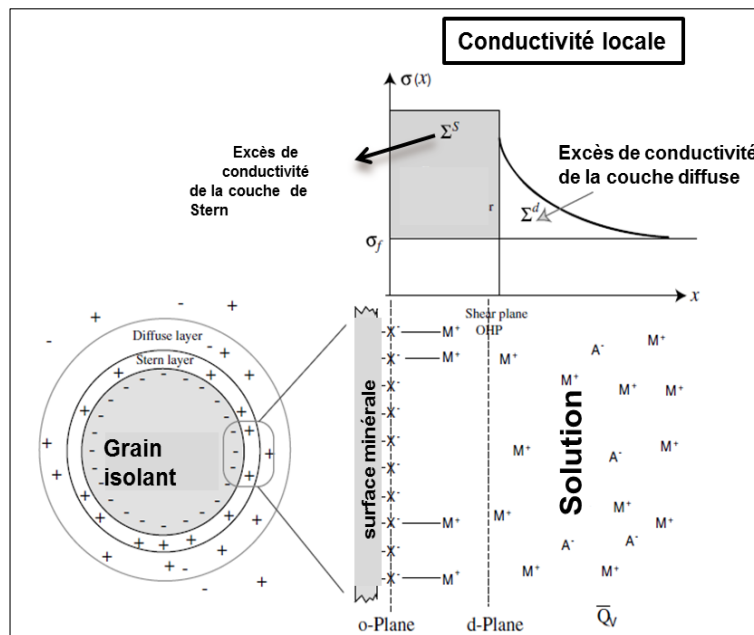


Figure 2.16 Schéma de la double couche électrique dans l'espace poreux montrant la distribution des ions à l'équilibre (Revil and Florsch, 2010).

En l'absence de particules métalliques (pyrite ou magnétite, en général), les principaux mécanismes de polarisation sont liés à la polarisation de la partie intérieure de la double couche électrique qui est appelée la couche Stern (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2013). Aussi d'autres mécanismes de polarisation, tels que la polarisation membranaire (Figure 2.17) et la polarisation de Maxwell-Wagner (Figure 2.18) peuvent contribuer à la réponse mesurée. Il convient de rappeler que la polarisation de membrane se forme lorsque les grains sont proches. Dans ce cas, les couches diffuses des grains se chevauchent et donc, en présence du courant électrique, les cations peuvent migrer dans la couche diffuse par contre les anions en raison de leur taille volumineuse ne peuvent pas traverser la zone de chevauchement de cette couche où ils s'accumulent, et puis ils produisent une différence de potentiel à travers la zone de blocage (Figure 2.17).

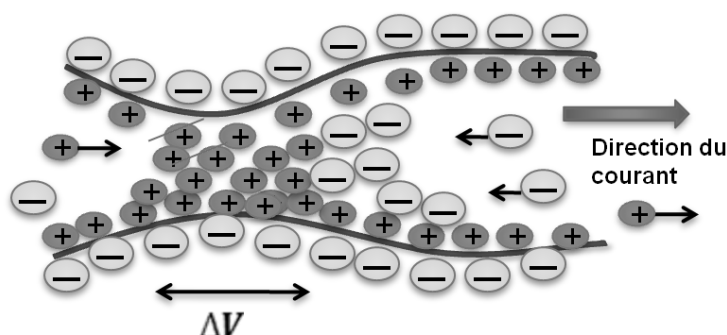


Figure 2.17 Schéma de polarisation de membrane. Modifié d'après Reynolds (2011).

Aux hautes fréquences ($f > 100$ Hz), la partie imaginaire de la conductivité complexe peut être influencée par la permittivité diélectrique du milieu et par la polarisation de Maxwell-Wagner pour les matériaux hétérogènes (Leroy et al., 2008). Ce dernier est associé à l'accumulation de charges (blocage des ions) à l'interface solide-liquide-air qui provoque une discontinuité électrique. La polarisation de Maxwell-Wagner est également contrôlée par la conductivité de surface, le facteur de formation (F) et les propriétés diélectriques des différentes phases des matériaux poreux (Chen and Or, 2006; Revil and Florsch, 2010). En effet sous l'application d'un champ électrique par un courant alternatif à l'interface de différentes phases (solide-liquide-air) qui sont considérées comme des discontinuités électriques, le déplacement est restreint et l'accumulation des charges est provoquée. Cette accumulation à l'interface isolante et conductrice génère l'effet de la polarisation (Figure 2.18). Selon Revil and Florsch (2010), à cause du chevauchement entre les couches diffuses au contact des grains, la polarisation de la couche diffuse devient faible, donc les effets de la polarisation de

la couche de Stern peuvent être prépondérants. Il convient de noter que la polarisation de la couche de Stern de très petits grains peut également se produire à des fréquences relativement élevées, mais dans ce cas, l'effet de Maxwell-Wagner est le mécanisme dominant de la polarisation (Figure 2.19).

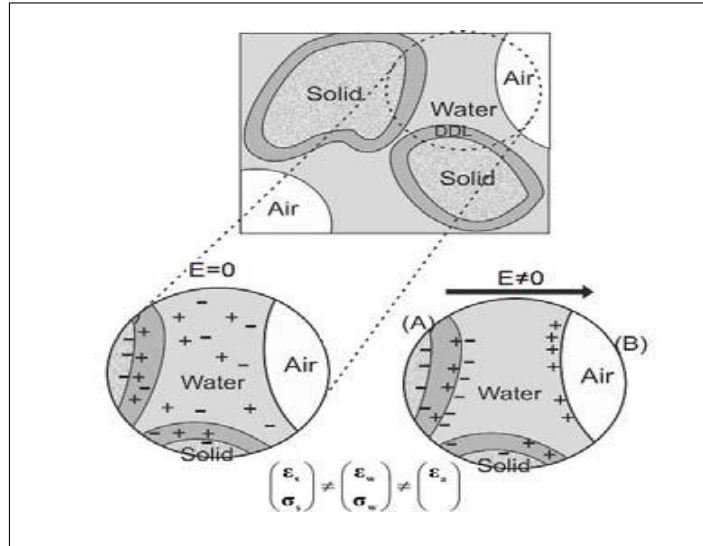


Figure 2.18 Polarisation de Maxwell-Wagner (polarisation d'interface) (A) Alignement des charges associées à l'interface solide-liquide (B) Accumulation des charges à l'interface liquide-air sous l'application du champ électrique (Chen and Or, 2006).

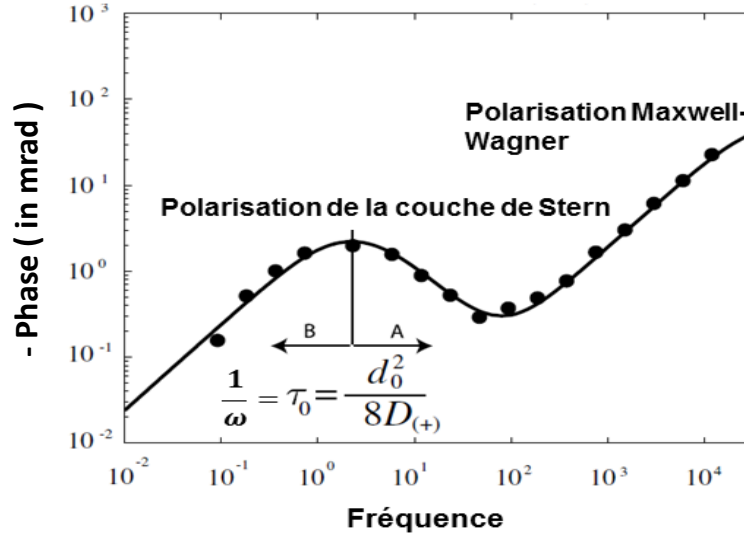


Figure 2.19 Courbe de déphasage (en mrad) en fonction de la fréquence pour un matériau granulaire. Les flèches présentent la variation de la fréquence de résonance avec la taille des grains (Revil and Florsch, 2010).

Dans la Figure 2.20 tirée de travail de Revil (2013), un spectre typique de différents phénomènes de la polarisation est présenté en termes de permittivité effective (K_{eff}) sur une bande de fréquence (mHz-GHz). Les résultats montrent que la polarisation à basse fréquence est sept fois plus grande que celle à haute fréquence ; en raison de l'effet de la polarisation de la couche de Stern (partie imaginaire de la conductivité électrique en termes σ''/ω). Par conséquent, la polarisation de la double couche électrique (appelée α -polarisation en électrochimie) montre le rôle dominant de la permittivité apparente du matériau aux basses fréquences.

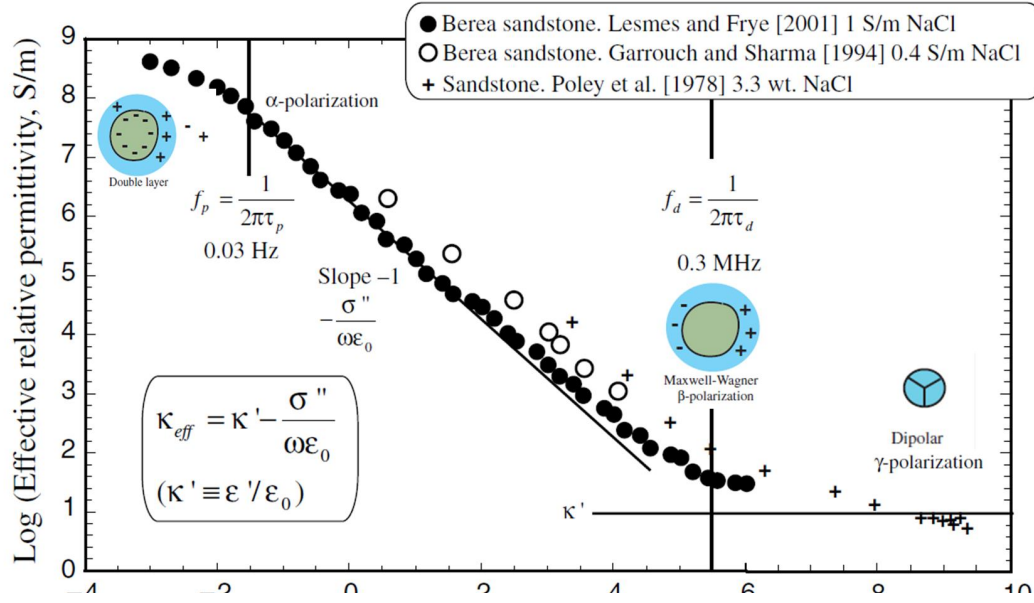


Figure 2.20 Évolution de différent phénomène de polarisation en fonction de fréquence dans un milieu poreux chargé. La α -polarisation correspond à la polarisation de la double couche électrique, la β -polarisation correspond à la polarisation de Maxwell-Wagner, et la γ polarisation concerne la polarisation des molécules d'eau (liées et libres) avec leur réorientation sous la champ électrique. Les fréquences caractéristiques f_p et f_d correspondent à une fréquence caractéristique pour la polarisation de l'espace vide et à la transition entre la α -polarisation et la polarisation diélectrique à haute fréquence, respectivement. ε : la permittivité diélectrique (charges liées avec les mouvements faibles). Modifiée de Revil (2013).

Récemment, des nouveaux modèles ont été développés pour décrire la conductivité complexe des matériaux argileux et du sable saturés et non saturés dans le domaine des basses fréquences (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2013). Certain travaux (Revil et al., 2013; Attwa and Günther, 2013) ont étudié les divers modèles pétrophysiques qui incluent la perméabilité, à partir de la conductivité complexe des échantillons de saprolite. Ils ont démontré que la polarisation n'est pas contrôlée par la couche diffuse, mais plutôt par la couche de Stern. En considérant la loi d'Archie, Revil and Florsch (2010) ont présenté l'équation suivante pour la conductivité électrique du matériau poreux lorsque la conductivité de surface (σ_s) existe le long de la surface des grains :

$$\sigma^* = \frac{1}{F} [\sigma_w S_W^n + (F - 1) \sigma_s^*] \quad (2.24)$$

Où σ_w est la conductivité de l'eau interstitielle et F est le facteur de formation. n est l'indice de saturation est généralement supérieur à l'indice de cimentation ($n > m$). Lorsque le facteur

de formation devient $F \geq 1$ (dans le cas des matériaux bien cimentés) et les échantillons complètement saturés (S_w), l'équation précédente peut être simplifiée :

$$\sigma^* = \frac{1}{F} \sigma_w + \sigma_s^* \quad (2.25)$$

Récemment, Leroy et al. (2008) et Revil and Florsch (2010) ont proposé le modèle de conductivité de surface complexe suivant pour un milieu poreux granulaire .:

$$\sigma_s^* = \frac{4}{d_0} (\Sigma^d + \Sigma^s) - \frac{4}{d_0} \frac{\Sigma^s}{(1 + i\omega\tau_0)}. \quad (2.26)$$

Où Σ^d et Σ^s sont respectivement la conductivité de surface spécifique de la couche diffuse et la conductivité de surface spécifique associée à la couche Stern (en S), ω est la valeur angulaire fréquence en (rad.s^{-1}), τ_0 est le temps de relaxation qui est le temps nécessaire pour établir une distribution ionique dans la couche de stern pour le diamètre de grain d_0 (en m) sous l'action d'une charge électricité statique.

Selon Revil and Florsch (2010), la conductivité de surface pour chaque partie de la double couche électrique est définie respectivement à haute et à basse fréquence :

$$\sigma_s^0 = \frac{4}{d_0} \Sigma^d, \quad (2.27)$$

$$\sigma_s^\infty = \frac{4}{d_0} (\Sigma^d + \Sigma^s). \quad (2.28)$$

Le concept de la double couche électrique (EDL) a été également utilisé pour modéliser l'expansion du gel causée par la réaction alcali-silice (RAS). Selon les travaux de Prezzi et al. (1997); Rodrigues et al. (1999); Chatterji (2005); Comi et al. (2014), le modèle EDL peut déterminer la quantité d'expansion à partir de la mesure de la valence des cations dans le gel RAS. Autrement dit, lorsque la valence des cations augmente, le taux d'expansion diminue, il est à remarquer que la valence des cations augmente (Rodrigues et al., 1999; Comi et al., 2014); monovalent(Na^+) > divalent(Ca^{2+}) > trivalent.

2.7 Décomposition de Debye

Le temps de relaxation semble être un paramètre significatif pour obtenir des informations sur la taille des grains ou pores du matériau étudié (Nordsiek and Weller, 2008; Revil et al., 2012; Ghorbani A. et al., 2007). Par conséquent, l'inversion de ce paramètre est importante dans le

but de caractériser la réponse électrique fréquentielle des matériaux. Une fois les mesures de résistivité complexe réalisées, les données PPS sont ajustées à un modèle de décomposition de Debye pour déterminer la distribution des chargeabilités en fonction du temps de relaxation, et la résistivité DC. De ces paramètres intégrateurs, on peut tirer la chargeabilité totale, les temps de relaxation moyen, symptomatiques des mécanismes de polarisation présents. Les paramètres calculés sont obtenus du modèle de décomposition de Debye (DD). Le modèle de Debye généralisé utilisé dans ce travail est celui décrit par Nordsiek and Weller (2008) :

$$\rho^*(\omega) = \rho_0 \left(1 - \sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \left(1 - \frac{1}{1 + i\omega\tau_k} \right) \right) \quad (2.29)$$

Dans cette formulation DD, la résistivité complexe est ($\rho^*(\omega)$) donnée en fonction de $2n+1$ paramètres, soit n chargeabilités (m_k ; $k=1, n$), n temps caractéristiques de relaxation (τ_k ; $k=1, n$) et la résistivité en courant continu (ρ_0). L'indice k représente chacun des modes de relaxation qui se superposent dans les réponses PPS (Bérubé et al., 2017a). Pour déterminer les $2n+1$ paramètres de la décomposition de Debye, un ajustement des réponses calculées à celles observées est recherché à l'aide d'une approche stochastique (inversion par inférence bayésienne des paramètres PPS) suivant un code développé et publié écrit en langage Python par (Bérubé et al., 2017a). Le code permet d'estimer les paramètres optimaux et leurs incertitudes à partir des mesures et de leurs erreurs (observations). Le résultat principal consiste dans la distribution des chargeabilités en fonction des temps de relaxation (ou RTD en anglais). On peut alors évaluer la chargeabilité totale (Σm or m_{tot}), le temps de relaxation moyen (τ_{mean}), le temps de relaxation médian (τ_{50}) et le temps de relaxation maximum ou pic de phase (τ_{peak}). Il est à noter que la chargeabilité totale (m_{total}) ne correspond pas exactement à l'aire sous la courbe. C'est la somme de toutes les valeurs de m : $[m_1, m_2, m_3, \dots, m_N]$ associées aux points dans le spectre des temps de relaxation τ $[\tau_1, \tau_2, \tau_3, \dots, \tau_N]$:

$$m_{tot} = \sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \quad (2.30)$$

Dans ce programme, la chargeabilité peut être exprimée comme une fonction polynomiale du temps de relaxation RTD (Bérubé et al., 2017a) :

$$m_\tau = \sum_{p=0}^P a_p (\log_{10} \tau)^p \quad (2.31)$$

Où p est l'ordre de l'approximation polynomiale, et a_p sont les coefficients polynomiaux. selon le modèle de polarisation présenté par Revil and Florsch (2010), le temps de relaxation peut

être déterminé par :

$$\tau_0 = \frac{d_0^2}{8D}. \quad (2.32)$$

Où d est le diamètre d'un grain et D est le coefficient de diffusion des ions. D'autre part, selon le modèle de polarisation de membrane de Revil et al. (2012), le temps caractéristique de relaxation d'un matériau pourrait également être calculé par :

$$\tau_0 = \frac{\Lambda^2}{2D}. \quad (2.33)$$

Où Λ est le rayon de l'ouverture de l'espace entre les grains. Selon les travaux de Gurin et al. (2013), Abdulsamad et al. (2016), Placencia-Gómez et al. (2013), et Revil et al. (2015), le temps de relaxation semble être un paramètre capital pour obtenir des informations sur la taille des grains ou des pores du matériau étudié, l'estimation contribuant ainsi à sa caractérisation.

2.8 Conclusion

L'objectif de ce chapitre est de fournir une analyse approfondie sous tous les angles des questions liées à cette thèse (sous-section :1.3.1), qui est basée sur la mise en évidence de la réaction alcali-silice (RAS) par méthode polarisation provoquée spectrale (PPS). À cet égard, la nature de la réaction chimique et le modèle correspondant ont d'abord été présentés. Par la suite, une analyse des propriétés physiques, mécaniques du gel de silice et des propriétés électriques du béton a été introduite afin de comprendre ses impacts sur l'endommagement de la microstructure du béton par la RAS. Le principe de la PPS et les définitions des propriétés électriques complexes ont été présentés en détail. Une série de facteurs externes pouvant influencer les réponses mesurées ont été étudiés. À cet égard, un système de mesure précis doit être mis en place afin d'obtenir des données électriques avec un minimum erreur. L'analyse de la double couche électrique a été détaillée au niveau de la caractérisation de comportement électrochimique des matériaux sous l'influence d'un champ électrique. Par la suite, l'application du modèle de décomposition de Debye a été étendue à la caractérisation de la chargeabilité en fonction du temps de relaxation, ainsi qu'à la distribution de la taille des grains. Une revue des méthodes principales utilisées pour détecter et suivre le développement de la RAS a été présentée en analysant leurs avantages et leurs sensibilités.

CHAPITRE 3 STRUCTURE DE THÈSE PAR ARTICLES

L'essentiel des résultats du travail de doctorat sont regroupés dans trois articles qui seront respectivement présentés aux chapitres (4, 5, et 6). Ce chapitre présente les éléments les plus importants de chaque article, et la cohérence par rapport aux objectifs de la recherche. Les articles sont expliqués et classés par ordre chronologique.

3.1 ARTICLE 1 (CHAPITRE 4) : Mesure des propriétés électriques des échantillons de mortier et de béton par polarisation provoquée spectrale : mise en place en laboratoire

« Measuring electrical properties of mortar and concrete samples using the spectral induced polarization method : laboratory set-up » a été soumis au journal *Construction and Building Materials* le 25 octobre 2018 et a été accepté le 13 mars 2019. La version finale a été publiée dans le numéro de juin 2019.

Auteurs : Yasaman Khajehnouri, Michel Chouteau, Patrice Rivard, Charles L. Bérubé.

Cet article porte sur la validation de notre méthodologie expérimentale au laboratoire par la méthode polarisation provoquée spectrale (ou spectroscopie d'impédance complexe). Il s'agit d'une technique non destructive qui est capable de caractériser les propriétés électrochimiques et physiques d'une structure complexe (béton, roches et sol) dans diverses conditions environnementales. Cet article présente une étape préliminaire afin d'assurer une mesure précise des réponses de la résistivité complexe de notre système de mesure dans une gamme de fréquences (1,43 mHz-20 kHz). L'objectif principal est de développer un système de mesure en laboratoire afin d'étudier les propriétés électriques complexes des échantillons de béton pour la détection précoce de la réaction de la silice alcaline, qui est reliée avec l'objectif général de notre travail de recherche (Section 1.3.1). À cet égard, un échantillon de mortier est d'abord utilisé comme matériau homogène (isotrope) afin de bien contrôler les paramètres externes (tels que l'effet de couplage, le facteur géométrique, l'impédance de contact, la polarisation des électrodes) au cours des mesures en laboratoire. Les performances et l'installation des outils de mesure tels que les électrodes (courant et potentiel), et ainsi que la conception du porte-échantillon sont également évaluées.

3.2 ARTICLE 2 (CHAPITRE 5) : Évaluation non invasive et non destructive du développement de la réaction alcali-silice dans le béton par polarisation provoquée spectrale : évaluation des propriétés électriques complexes

L'article « Non-destructive non-invasive assessment of the development of alkali-silica reaction in concrete by spectral induced polarization : evaluation of the complex electrical properties » a été soumis au journal *Construction and Building Materials* le 13 avril 2019.

Auteurs : Yasaman Khajehnouri, Michel Chouteau, Patrice Rivard, Charles L. Bérubé.

Cet article porte sur la surveillance de la différence entre le comportement électrique (déphasage, résistivité apparente, chargeabilité totale, temps de relaxation) d'échantillons de béton non affectés et affectés par la RAS. Des mesures en laboratoire de la résistivité complexe ont été effectuées dans la gamme de fréquences allant de 1,43 mHz à 20 kHz. Un modèle de décomposition de Debye (DD) a été utilisé pour déterminer la résistivité apparente DC (ou courant continu) et la distribution de la chargeabilité en fonction du temps de relaxation. La chargeabilité totale (Σ_m) et le temps de relaxation moyen (τ_{mean}) ont été calculés en tant que les paramètres DD pour caractériser le développement de la RAS. Le but de cet article était d'évaluer les performances de la méthode PPS afin de surveiller la différence entre les signatures spectrales, c'est-à-dire la résistivité électrique apparente (ρ_0), le déphasage (φ), le temps de relaxation (τ) et la chargeabilité (m) entre les échantillons en béton réactif (RC) et en non réactif (NRC) en conditions accélérées (60°C). Cet article traite aussi des relations entre les réponses complexes à la résistivité électrique (ρ_0 , φ , τ_{mean} et m) et l'évolution électrochimique (double couche électrique) de la microstructure affectée par la RAS. Cet article a abordé les trois premiers objectifs spécifiques de cette thèse (Section 1.3.2).

3.3 ARTICLE 3 (CHAPITRE 6) : Caractérisation du béton affecté par la réaction alcali-silice accélérée en laboratoire : validation des propriétés électriques complexes

L'article «Laboratory characterization of concrete affected by accelerated alkali-silica reaction : validation of complex electrical properties» a été soumis au journal *Cement and Concrete Research* le 9 mai 2019.

Auteurs : Yasaman Khajehnouri, Michel Chouteau, Patrice Rivard, Charles L. Bérubé.

Cet article traite de la corrélation entre les réponses de résistivité électrique complexes et

d'autres propriétés des structures en béton ; tels que les comportements physico-mécaniques (résistance à la compression, module d'élasticité, vitesse ultrasonore, expansion, masse variation, porosité, densité), les caractéristiques minéralogiques et pétrographiques du béton. Cette étude est dans le but de mis en évidence le développement de RAS et de la surveillance de la différence entre les mélanges non affectés et les mélanges affectés par cette réaction chimique, cet article est relié au quatrième objectif de notre thèse (Section 1.3.2). Afin de réaliser cet objectif, les mesures de PPS ont été effectuées simultanément avec les autres méthodes non destructives (expansion, variation de masse, vitesse de l'impulsion ultrasonore) pour les mélanges de béton (RC, NRC) jusqu'à leur destruction lors des essais mécaniques (résistance à la compression, module d'élasticité), analyses de la densité et de la porosité, et les examens pétrographiques. Cet article a souligné la sensibilité de PPS comme une technique non destructive pour monitorer le développement de la RAS. Dans ce cas, les réponses électriques (τ_{mean} , Σm) ont été validées en prenant en compte d'autres signatures de la RAS comme l'expansion, la vitesse ultrasonore (UPV), le module d'élasticité et l'analyse pétrographique par le DRI.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : MEASURING ELECTRICAL PROPERTIES OF MORTAR AND CONCRETE SAMPLES USING THE SPECTRAL INDUCED POLARIZATION METHOD : LABORATORY SET-UP

Construction and Building Materials

Volume 210, 20 June 2019, Pages 1-12

Authors :Yasaman Khajehnouri ¹, Michel Chouteau ¹, Patrice Rivard², Charles L. Bérubé ¹

¹Polytechnique Montréal, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines,
Montréal, QC, Canada

²Department of Civil Engineering, Université de Sherbrooke, QC, Canada

Abstract

Electrical impedance spectroscopy (EIS), also known as Spectral Induced Polarization (SIP) has proven to be a successful non-destructive technique able to characterize the chemical and physical properties of a complex structure (concrete, rocks, and soil) under various environmental conditions. Because this technique aims to measure small amplitude signals, it can easily be influenced by parasitic effects which are not representative of the intrinsic properties of the investigated material. The purpose of this paper is to validate the resolution of our experimental methodology as a preliminary step to ensure an accurate measurement of the bulk complex resistivity response of concrete samples within a wide frequency range (1.43 mHz-20 kHz). A cement mortar sample is first used as a homogeneous (isotropic) material to improve the sample holder design for reducing the errors and controlling the external parameters (such as coupling effect, geometric factor, contact impedance, electrode polarization) during the laboratory measurements. Also, the performance and installation of the measuring components such as the electrodes (current and potential) and the sample holder design are assessed. The specimen dimensions and designs are selected based on a sample standard size that will be used to determine the physico-mechanical properties of concrete (compressive strength, modulus of elasticity, ultrasonic pulse velocity, length variation). The examinations are performed in parallel with the SIP measurement on the same sample. The accuracy of our measurement setup is then validated using aluminum-bronze plates bonded to the sample using a conductive gel to transmit electric current with a density less than 10^{-3} A m^{-2} . The

results showed that by controlling the sponge moisture in the Ag/AgCl non-polarizable voltage electrodes, our SIP measurement system is able to measure the phase lag with an error smaller than 1 mrad over a frequency range from 1.43 mHz to 20 kHz.

4.1 Introduction

Electrical method is one of the best non-destructive methods for the assessment of structural damage and concrete structures conditions. A number of investigations have focused on using bulk and surface resistivity method extensively in the construction industry i.e. to assess corrosion of reinforcing steel (Polder et al., 2000; Polder, 2001; Morris et al., 2002; Ramezaniyanpour et al., 2011; Hornbostel et al., 2013; Yu et al., 2017), to detect and to study cracks in concrete (Lataste et al., 2003) to estimate the impact of the coarse aggregates (Hou et al., 2017), and different types of cement on the electrical resistivity of concrete (Medeiros-Junior and Lima, 2016), as well as the correlation between bulk and surface resistivity (Ghosh and Tran, 2015; Azarsa and Gupta, 2017). These DC electrical methods are used to determine only the electrical resistivity according to Ohm's law at a fixed frequency or over a very limited frequency range. Since concrete is a highly heterogeneous material, finding an optimal technique could be difficult to understand the behaviour of its complex microstructure and to discriminate the electrical properties of diverse components such as the hydrated cement paste, the aggregate skeleton and the interfacial transition zone (ITZ).

Over the last few years, spectral induced polarization (SIP) also known as electrical impedance spectroscopy (EIS) has been promoted as a fast, non-destructive and sensitive technique that is used to characterize the complex microstructure of materials such as soils (Vanhala and Soininen, 1995; Aal et al., 2006; Revil and Florsch, 2010; Revil and Skold, 2011; Revil et al., 2012; Revil, 2013; Revil et al., 2014, 2017), sediments (Slater and Lesmes, 2002; Zimmermann et al., 2008; Koch et al., 2010, 2011) and mineralized rocks (Revil, 2013; Gurin et al., 2015; Revil et al., 2016a,b). The method has also proven to be a promising non-destructive technique for its ability to highlight and understand the microstructure of concrete, for instance to study the corrosion activity in reinforced concrete (Jolivet et al., 2007; Castela et al., 2014), to detect the location and the approximative number of cracks on the concrete surface (Pour-Ghaz and Weiss, 2011), and to characterize the surface treatments of the concrete (Syropoulou and Buenfeld, 2005). EIS is also useful to characterize the electrochemical behaviour of reinforced mortar samples contaminated with chlorides (Deus et al., 2014), to determine the resistance of the concrete to the penetration of chlorides into its microstructure (Loche et al., 2005; Sanchez et al., 2008), to monitor hydration products of cement mortar (Cruz et al., 2013) and to study carbonation behavior of cement mortar (Dong et al., 2014).

In order to study the electrical properties of materials such as concrete and cement, all the recent experimental setups had usually used AC impedance spectroscopy method in a frequency range up to 4 MHz. However, the applications are limited by the difficulties involved in the interpretation of EIS data due to overlapping phenomena, noise measurement resulting from the homogeneous samples (Ribeiro and Abrantes, 2016) and by the lack of adequate quantitative models to relate the electrical properties to the microstructure of cement-based materials (Christensen et al., 1994).

However, electrical impedance spectroscopy (EIS) originally referred to as the spectral induced polarization (SIP) is different in that the EIS frequency range is between 1 mHz and 50 MHz, while the SIP method is typically used for determining the electrochemical properties of material (polarization and electrical impedance) over the low frequency range of 1 mHz to 20 kHz. The SIP measurement may therefore be sensitive to the microstructure changes (capillary pores and gel pores) in concrete from the different chemical reactions (hydration, carbonation, alkali-silica reaction). Due to the heterogeneous structure of concrete, the measurement of its electrical properties requires an accurate and practical method to characterize the properties of its various components, namely cement, granular sand, water, and reactive products. Thus, in order to reliably measure such complex resistivity responses (phase, bulk resistivity) of the samples, a comprehensive experimental study is required to ensure that the laboratory measurement systems do not introduce any undesirable contributions to the electrical responses, especially on the phase lag component.

The main objective of this work is to develop a laboratory measurement system in order to study the complex electrical properties of concrete samples for early detection of alkali silica reaction. Our attention is directed towards monitoring both the in-phase (real) and quadrature (imaginary) components of impedance over a wide frequency spectrum (1.43 mHz-20 kHz) using the spectral induced polarization (SIP) method. Since, the imaginary part of the complex resistivity is in general much smaller than the real part, typically 1% and less, an accurate system and a measurement procedure must be therefore implemented in order to resolve it.

This paper focuses on the experimental setup that we had to design in order to measure SIP responses on large cement mortar and concrete samples, and on the protocol to assess performance and resolution of the measurement system (including the sample holder). The principles of SIP are first introduced, followed by the experimental methodology and the basic data analysis procedure on the samples used in this study.

4.2 Measurement protocol

We aim to assess the potential value of SIP measurements to investigate the link between electrical and physico-mechanical properties of concrete through its different chemical reactions (Alkali-silica reaction, cement hydration). Therefore the dimensions of the concrete specimens are selected based on the sample standard size that is used for mechanical testings (compressive strength, modulus of elasticity), and ultrasonic pulse velocity (UPV). In addition, our cylindrical specimens have two stainless steel reference studs fixed at the ends to measure electrical resistivity (SIP technique), and variation in length with time (expansion ; CSA A23.2-14A Canadian standard).

According to the size of concrete specimen used in our SIP measurement system, the application of the previous SIP setups Vinegar and Waxman (1984); Binley et al. (2005) may not be optimal because of time-consuming and complicated procedure of the sample preparation.

In the sample holder previously presented by Vinegar et al. and Binley et al. (Vinegar and Waxman, 1984; Binley et al., 2005), electrical current is injected using the end cylindrical chambers (filled with electrically conducting fluid). If this setup will be used in our experiment, the end caps should be filled with alkaline solution (1N NaOH) in order to prevent the ion diffusion effect from an area of high concentration (NaOH saturated samples) to an area with low concentration (conducting fluid). In addition, two studs (fixed at the ends of concrete specimens) will be placed inside the cylindrical chambers. In this case, they will protrude into the current pathway that may have an impact on the SIP response of the samples. Besides, the holder arrangement adopted by Vinegar et al. and Binley et al. Vinegar and Waxman (1984); Binley et al. (2005) used two points of potential measurements on only one side of a sample, whereas our sample holder allows us to measure simultaneously two different sides of a heterogeneous structure using two dipole arrays and electrode configurations (Figure 4.1). Therefore, compared to the experimental setup of Vinegar et al. and Binley et al. Vinegar and Waxman (1984); Binley et al. (2005), the SIP measurement can be implemented quicker using our sample holder for two different sides of the sample over a wide frequency range from 1.43 mHz to 20 kHz. This can help to accurately monitor the variation of SIP response for a complex structure.

The SIP-Fuchs III acquisition system (www.radic-research.de) is the main component that was employed to conduct the spectral induced polarization experiments. The SIP instrument drives a sinusoidal source voltage to both ends of the sample at selected frequencies which are logarithmically distributed within the range of 1.43 mHz to 20 kHz (in our application, we used 25 frequencies). According to Ohm's law, the resulting current causes a potential

difference of the same frequency in the material characterized by a phase lag with regards to the transmitted current (Okay Ahi, 2011). The electrical resistivity (bulk resistivity) and polarization effects can generally be represented by a complex quantity (ρ^*) which is expressed in terms of magnitude ($|\rho^*|$) and phase lag (φ) or by the real (ρ') and imaginary (ρ'') parts following the Euler relationship (Revil et al., 2013) :

$$\rho^*(\omega) = \rho'(\omega) + i\rho''(\omega) = |\rho^*(\omega)| \exp(i\varphi) = |\rho^*(\omega)| (\cos \varphi + i \sin \varphi). \quad (4.1)$$

The term i denotes the imaginary unit $i = \sqrt{-1}$, ω is the angular frequency where the resistivity amplitude $|\rho|$ is given by $|\rho^*| = \sqrt{(\rho')^2 + (\rho'')^2}$, and the phase lag is given by $\varphi = \arctan(\rho''/\rho')$. According to Ohm's law, the complex resistivity expressed in $\Omega \text{ m}$ depends on the potential difference $\Delta V^* = |V^*| \exp(-i(\omega t + \varphi))$ and the geometrical factor K :

$$\rho^*(\omega) = K \left(\frac{\Delta V^*}{I^*} \right). \quad (4.2)$$

Our set-up combines the advantages of the two measuring methods presented in Polder et al (Polder et al., 2000; Polder, 2001) and Gosh and Tran (Ghosh and Tran, 2015), the four-electrode method and the two-electrode method. In this case, the two plate electrodes at each end of the sample as current electrodes but we do not measure the voltage between them ; instead we use two inner receiver electrodes positioned at some distance away from each current electrode (Figure 4.1). In our sample holder, an extra pair of receiver electrodes were added for measuring simultaneously two different sides of a (heterogeneous) concrete sample in order to verify isotropy of the complex electrical response. Our measurement system could be used to determine the complex electrical impedance across a cylindrical sample applying two configurations of measuring electrodes (external and internal electrodes on the same side (Figure 4.1).

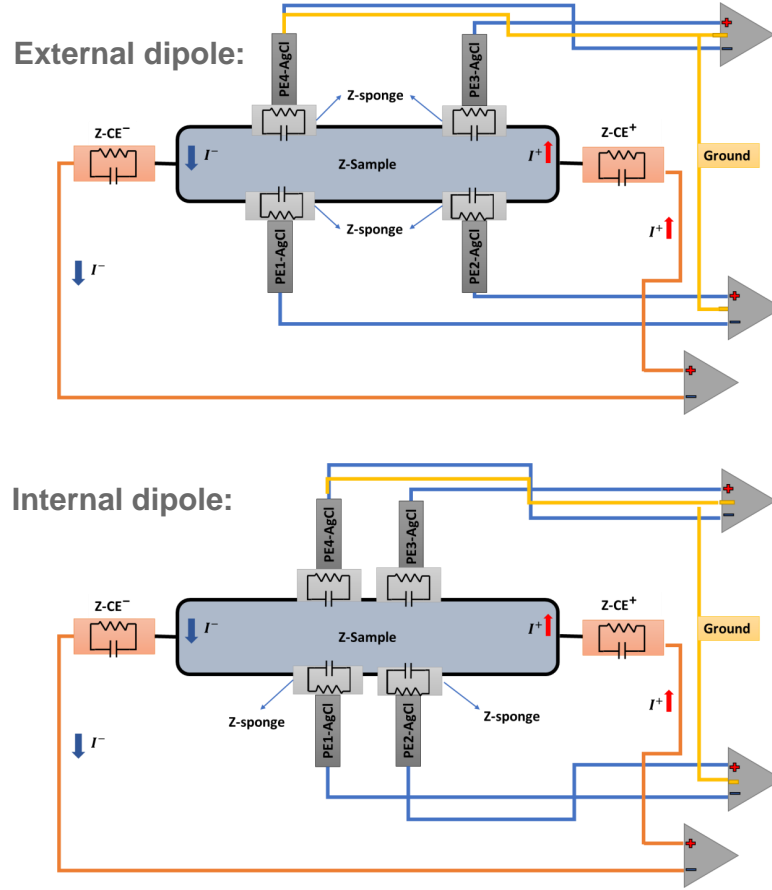


Figure 4.1 Measurement system with four potential non-polarizable electrodes (PE-Ag/AgCl :1-4) and two current electrodes (CE). Z-sample : impedance across the sample. Z-CE : contact impedances for the current electrodes. Z-sponge : contact impedances at potential electrodes.

The measuring electrodes pairs are mounted on two longitudinal profiles separated by an angular distance of 90° (Figure 4.2). The measurement electrodes (external and internal dipoles) are placed symmetrically with regards to the middle of the sample and one of the potential electrodes serves as a reference point to ground the analogous mass of the remote unit of voltage measurement. The electric current can be transmitted through aluminum-bronze plates installed at both ends of the sample or through the stainless-steel studs fixed at each end of the sample (Figure 4.2). In order to check the performance of this electrical measurement system, all the tests were first carried out on a mortar sample as a relatively homogeneous material, and then on a concrete specimen, which is considered a more heterogeneous material.

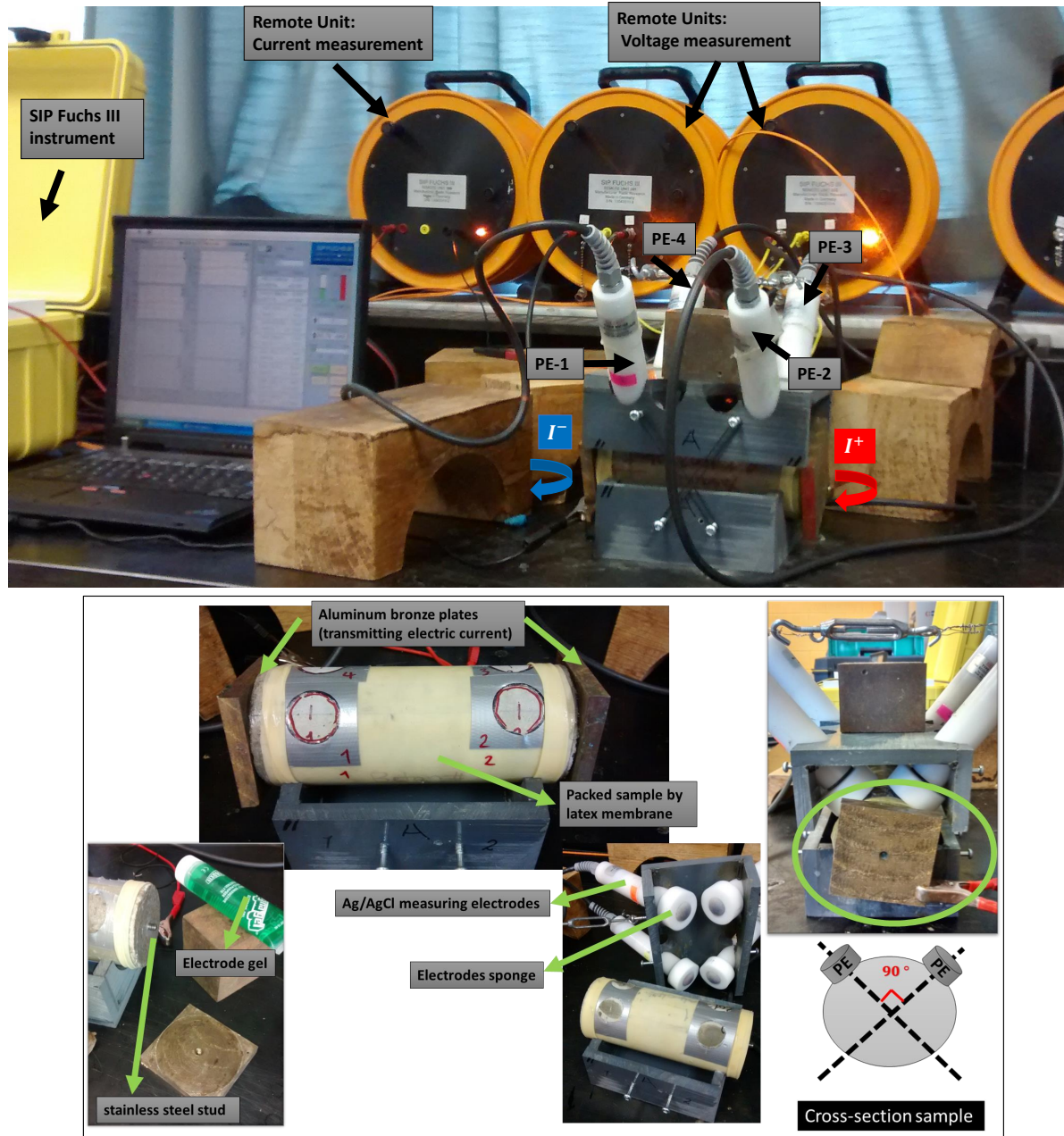


Figure 4.2 SIP sample holder with external and internal electrodes configuration for SIP. PE : potential electrodes. I^+ and I^- show the flow of electrical current using aluminum-bronze plates.

4.2.1 External factors

Figure 4.3 displays the external factors that can impact the electrical measurements. In order to obtain accurate data with minimal error, it is necessary to control these factors during SIP testing. Part of the SIP responses can be dominated by the electromagnetic coupling effects

(the inductive and capacitive coupling).

The electromagnetic coupling may depend on the frequency of measurement and on the conductivity of tested material. The higher both parameters are, the more important the electromagnetic coupling is (Okay Ahi, 2011). In addition, these effects is magnified by increasing length of the cables or electrode contact impedance (Schmutz et al., 2014). Given that for each installation and sample, the contact impedance will vary. It is therefore difficult to reduce those effects by compensation, in order to reduce the electromagnetic coupling effects, it is recommended to use lower frequencies below 1 kHz, and to adequately separate the transmitting cables from the measuring (potential) cables (Pelton et al., 1978; Schmutz et al., 2014). Also, the maximum spacing between the electrodes can influence this effect (Ford et al., 1995).

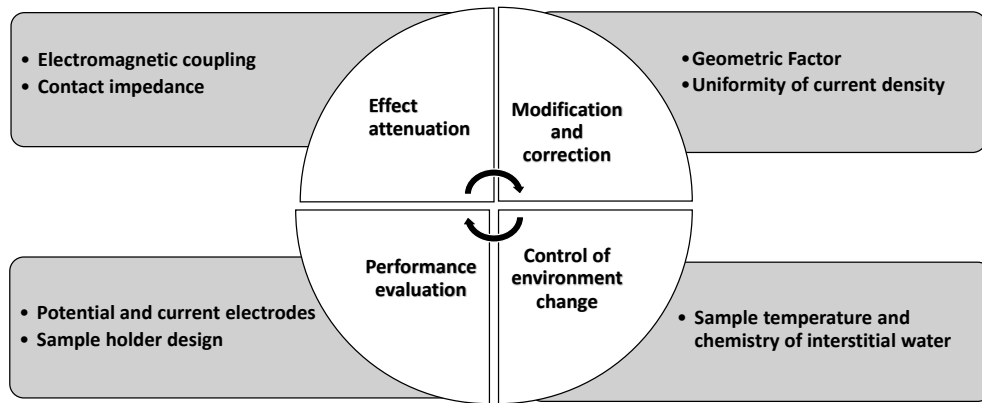


Figure 4.3 External factors impacting quality of electrical measurement on samples.

Electrode polarization is also a disturbance that may become very important, especially if the samples generate low polarization intensities (Okay Ahi, 2011). Non-polarizable potential electrodes were used to significantly reduce its impact on the measurement especially at very low frequencies (< 0.1 Hz). In addition, in a laboratory system the phase accuracy depends essentially on the properties of the instrument (input impedance, capacitive coupling effects), on the electrode/electrolyte (or electrodes/material) contact, and on the sample preparation (Vanhala and Soininen, 1995).

During the SIP measurements, current density must also be as uniform as possible throughout the sample. It shall be noted that a high current intensity generates a higher current

density around the electrodes, which may cause non-linear effects (Vinegar and Waxman, 1984; Vanhala and Soininen, 1995). Therefore, we use low current density (between 10^{-2} and 10^{-1} A m^{-2}) while also ensuring that it is sufficient to maximize the signal-to-noise ratio. In addition, the phase lag response depends on the inclination of the measuring electrodes with regards to the sample surface, and on the distance between the measuring electrodes and the current electrodes (Zimmermann et al., 2008). In our experiment, the variation of phase lag remains negligible with greater spacing between the electrodes and their perpendicular position to the sample surface (Figure 4.2).

In order to determine the resistivity of the samples for the different electrodes layouts (external and internal), the geometric factor was computed using COMSOL Multiphysics AC/DC module (Version 5.2, COMSOL Inc.). The electrical response of the samples (concrete, mortar) was computed using finite element modelling to solve Maxwell's equations for the given geometrical and physical parameters of the sample (Figure 4.4).

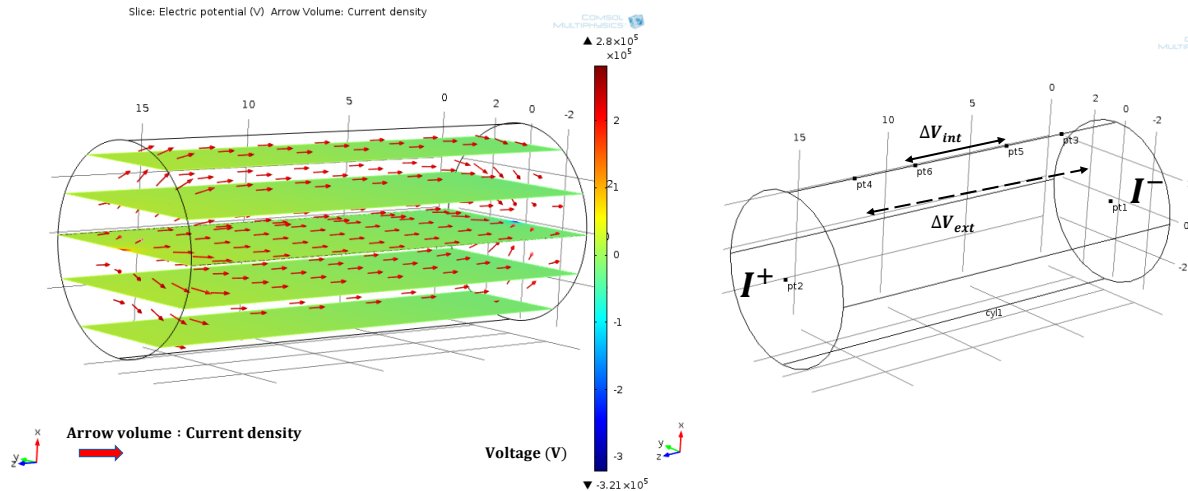


Figure 4.4 Computation of the geometric factor by COMSOL modeling. ΔV_{int} : electric potential difference for internal electrodes. ΔV_{ext} : electric potential difference for external electrodes.

The computed response of the model is the electrical voltage for each pair of electrodes. The geometric and physical parameters of a model include the size of the sample, the electrode locations, and the electrical conductivity of the sample (σ_{sam}). In this case, the mortar sample is considered to be an isotropic homogeneous medium with a constant conductivity of the

pore water. The voltage difference for each electrode is given by solving :

$$-\nabla(\sigma \nabla V - J^e) = Q_j, \quad (4.3)$$

Where σ is the conductivity of the isotropic medium, Q_j is a distributed current source (SI unit : A m^{-3}), and J^e is an externally generated current density (SI unit : A m^{-2}). Therefore, it is possible to define a geometric factor (K) using the potential difference calculated (ΔV) between each electrode layout, the applied current (I), and the given electrical conductivity of sample (σ_{sam}) :

$$K = \frac{I}{\sigma_{sam} \Delta V}. \quad (4.4)$$

It should be noted that the calculated geometric factor must be stable when varying the values of σ and Q_j to a given geometry.

Considering that the environmental conditions can have a significant effect on the accuracy of measurements, factors such as temperature and conductivity of electrolyte in the sample must be controlled during laboratory measurements to ensure stable environment conditions (Zisser et al., 2010; Bairlein et al., 2014; Slater and Lesmes, 2002).

4.2.2 Materials and sample holder

To estimate our measurement system quality, all preliminary tests were performed on a single mortar sample (190 mm-long and 76 mm in diameter) with sand particles up to 5 mm size after 140 days of curing. Mixture composition is presented in Table 4.1.

Tableau 4.1 Composition of the mortar. Porosity was measured after 20 weeks of curing.

Materials	Content (kg/m ³)
Portland Cement :	
Type GU	667
Sand	1833
Water :	323
water/cement	0.485
Porosity	0.095

In order to validate the accuracy of our measurement system on a heterogeneous material, the final tests (effect of electrodes sponge moisture and repeatability of SIP measurement) were carried out on a concrete cylinder after a curing time of 56 days, and with identical dimensions as the mortar sample that includes coarse aggregates with sizes 70% 10 mm to

20 mm and 30% from 5mm to 14 mm (Table 4.2).

Tableau 4.2 Composition of the concrete. Porosity was measured after 8 weeks of curing

Materials	Content (kg/m ³)
Portland Cement	
Type GU	420
Sand	887
Aggregates	850
Water	210
water/cement	0.5
Porosity	0.11

Our measurements were done in stable laboratory conditions controlled by monitoring the ambient humidity and temperature with a Digital Bionaire BT400 Thermometer/Hygrometer. The air humidity in the laboratory environment was kept constant at about 23%, and the moisture condition of samples was SSD (saturated surface dry). The saturated state was achieved by immersing the samples in hydrated lime solution (cement mortar sample) and in tap water (concrete sample). The electrical conductivity, pH and temperature of container water were monitored using a pH/conductivity meter (Thermo Scientific Orion Star A215) to ensure a stable measurement environment. The solution resistivity in the sample container was calculated using the inverse of measured solution conductivity with ± 0.01 resolution at room temperature (laboratory condition) just before performing electrical measurement on the sample. The solution resistivity for mortar sample was $0.96 \pm 0.01 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$. The concrete sample was immersed in tap water and the solution resistivity was $1.18 \pm 0.01 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$ at $24 \pm 0.1^\circ \text{C}$. In this case, the effect of the temperature variation on the resistivity solution is about $0.01 \text{ } \Omega \cdot \text{m}$, thus no significant variation was recorded in the temperature of the environment and samples during our electrical measurement. The variation of resistivity with temperature is compatible with the estimates made in Polder et al (Polder et al., 2000). Before SIP measurement, the specimens were taken out from the solution tank and wiped until dry surface for tests at controlled laboratory ambient condition (monitoring temperature and humidity using Digital Thermometer/Hygrometer). It should be noted that, in order to prevent and control the effect of temperature on electrical measurement system, each test presented in this paper was carried out on the same day.

In this work, saturation was considered complete (100%); moisture content (θ) was given by the product $(S \times \phi)$ (saturation \times porosity). ϕ was found to be 0.095 for the mortar sample (Table 4.1) and 0.11 for the concrete sample (Table 4.2). Porosity was estimated by the hydrostatic method on the samples after the final SIP measurements were done. The sample

was covered with a latex membrane sleeve to prevent drying and maintain constant saturation during the SIP measurements.

To avoid contamination by ground potential or conducting materials during electrical measurements, the sample holder is made of PVC a thermoplastic resistant and isolator material (Figure 4.2). Its special design involves two different electrode layouts, including internal and external positions, that allow simultaneous measurements on both sides perpendicular to each other from the center axes of the sample (Figure 4.2). In order to validate the accuracy of our measurement system on a heterogeneous material, the final tests (effect of electrodes sponge moisture and repeatability of SIP measurement) were carried out on a concrete cylinder of identical dimensions as the mortar sample that includes coarse aggregates 70% 10 mm to 20 mm and 30% from 5mm to 14 mm (Table 2).

4.2.3 Current and measuring electrodes

Two different current electrode materials were tested : the stainless-steel studs that are installed at each end of the sample, and the aluminum-bronze plates (78 mm \times 78 mm) which provide a high strength and corrosion resistance at atmospheric conditions. In addition, a conductive electrode gel (SIGNAGEL, Parker Laboratories, Inc.) was used to reduce the surface contact resistance between the current electrodes and the mortar (Figure 4.2) .

The non-polarizing electrodes (ME100-Ag/AgCl 0.5 M KCl Portable Mapping Reference Electrode, Silvion Company, UK) used as potential electrodes contained a sponge with a diameter of 32 mm. These sponges were kept soaked enough with a 3 % KCl solution to reduce the contact surface impedance between the potential electrodes and the sample surface.

4.3 Experimental SIP results

4.3.1 Current intensity test

This test was carried out on a saturated mortar sample and by applying source voltages of 1 V, 3 V, and 10 V. Three different current injection modes were tested for each applied voltage : (1) aluminum-bronze plates coated with conductive gel, (2) aluminum-bronze plates without gel, and (3) direct connection with the stainless steel studs. The external electrode layouts consists of two dipole arrays (PE :1-2 : two-point voltage measurement using potential electrodes 1 and 2, PE :3-4 : two-point voltage measurement using potential electrodes 3 and 4) spaced 12 cm apart on the sample surface (Figure 4.2). Given that these pairs of electrode configurations were symmetrically placed relative to the middle point of the cylindrical sample

(assumed to be homogeneous and isotropic), the measured complex resistivity responses (phase lag and resistivity) should be the same behavior for both dipoles. Any departure one from the other indicates some level of anisotropy.

Figure 4.5 shows that the type of electrode (and therefore the electrode contact impedance) clearly affects the electric current intensity. As a result, the current transmitted using aluminum-bronze plates with conductive gel (Figure 4.5A) is slightly higher (6000 μA) than the other current injection modes, which yield 5000 μA for the aluminum-bronze plates without gel (Figure 4.5B) and 4000 μA for the stainless steel studs (Figure 4.5C). Using the SIP-Fuchs III system, the voltage is not sampled at frequencies of 60 Hz, 180 Hz, and 300 Hz because of a numerical filter that is activated at these frequencies to suppress the noise caused by power lines harmonics (Figure 4.5).

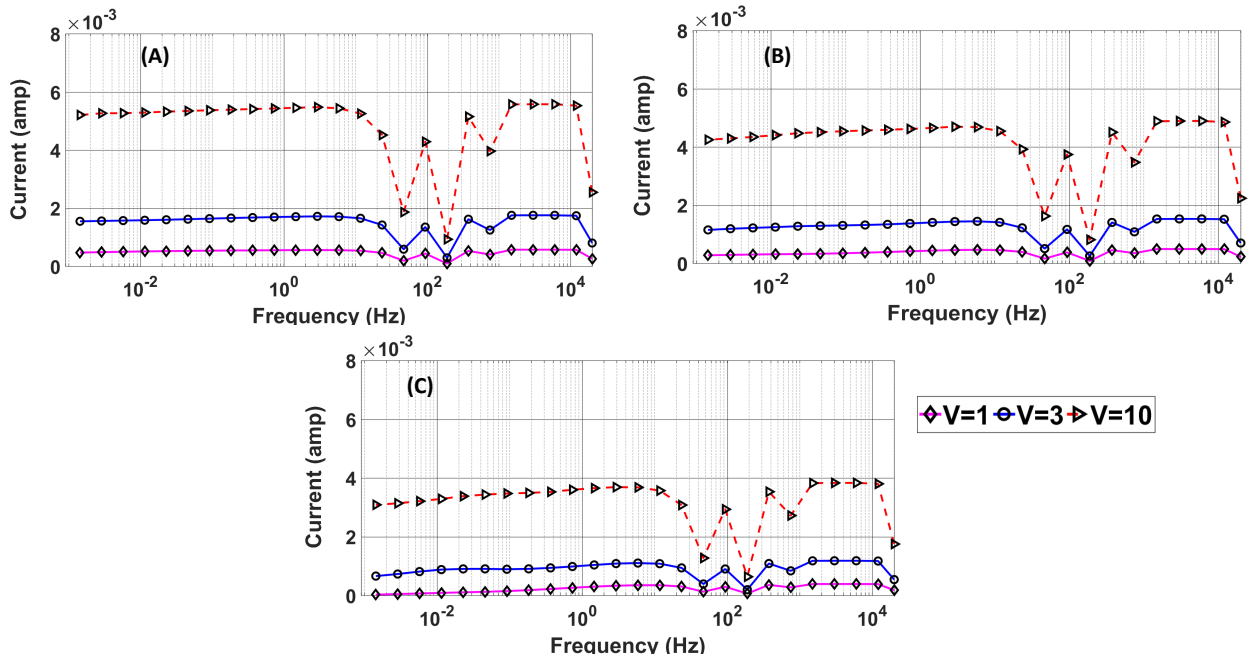


Figure 4.5 Electric current transmitted through the mortar sample for three applied source voltages (1 V, 3 V, and 10 V) on the frequency range 1.43 mHz to 20 KHz using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B), and stainless steel studs (C). Resistivity of the hydrated lime solution saturating the sample is $0.96 \pm 0.01 \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$.

The sample resistivity measured using aluminum-bronze plates with gel (Figure 4.6A) showed a similar behavior around $38\text{--}39 \Omega \text{ m}$ for both external dipole arrays (PE :1-2 and PE :3-4) by means of different applied source voltages (1 V, 3 V, 10 V) in the frequency range from 1.43

mHz to 20 kHz. Therefore, the applied voltage and resulting current intensity do not have a significant influence on the accuracy of the sample resistivity (Figure 4.6). Results also showed a slight increase of electrical resistivity ($< 2 \Omega \text{ m}$) from 1 V to 10 V (Figure 4.6A). This effect may be due to local drying of the sample surface near its contact with the electrodes that can occur during the measurement period (each sweep across the frequency range takes 1 hour 45 minutes to complete).

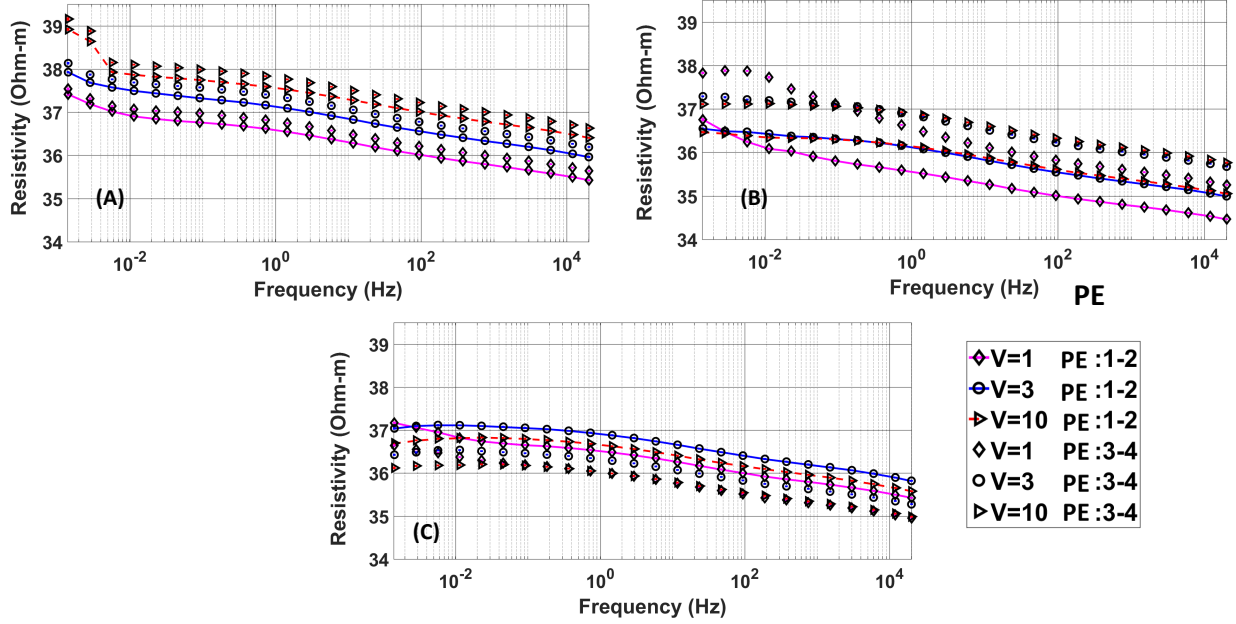


Figure 4.6 Measured apparent resistivity of saturated mortar for different current intensities (source voltages of 1 V, 3 V and 10 V) for the external electrodes layout using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B) and stainless steel studs (C). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$.

In the case of source voltage of 1 V and aluminum-bronze plates without gel, the results typically showed the non-similar behavior of resistivity response between the potential electrodes layouts (PE :1-2, PE :3-4) in the frequency range 1.43 mHz-100 Hz (Figure 4.6). Resistivities measured with stainless steel studs used as current electrodes (Figure 4.6C) showed a difference of 0.5 to 1 $\Omega \text{ m}$ between both of the samples (including symmetrical dipoles : PE :1-2, PE :3-4) using source voltages of 1 V, 3 V and 10 V over a wide frequency range from 1.43 mHz to 20 kHz.

The phase lag spectra of the mortar sample is shown in Figure 4.7. For current transmission

using aluminum-bronze plates with conductive gel, increasing source voltage slightly impacted the phase response in the frequency range 1.43 mHz-100 Hz where the phase error increased (> 4 mrad) at low frequency from 1.43 mHz to 11 mHz. For current transmission using stainless steel studs, the phase responses showed a similar behavior with errors around 1 to 5 mrad in the frequency range from 1.43 mHz to 20 kHz (Figure 4.7). For a source voltage of 1 V and aluminum-bronze plates without gel, two pairs of dipole array (PE :1-2 , PE :3-4) did not show the same behavior of phase lag in the low-frequency range from 1.43 mHz to 11 Hz. In this case, the results showed a phase error of 10 mrad for dipole PE :1-2 over a frequency range from 0.01 Hz up to 10 Hz. However, this undesirable effect is reduced by increasing source voltage (current intensity) from 1 V to 3 V and 10 V (Figure 4.7)B.

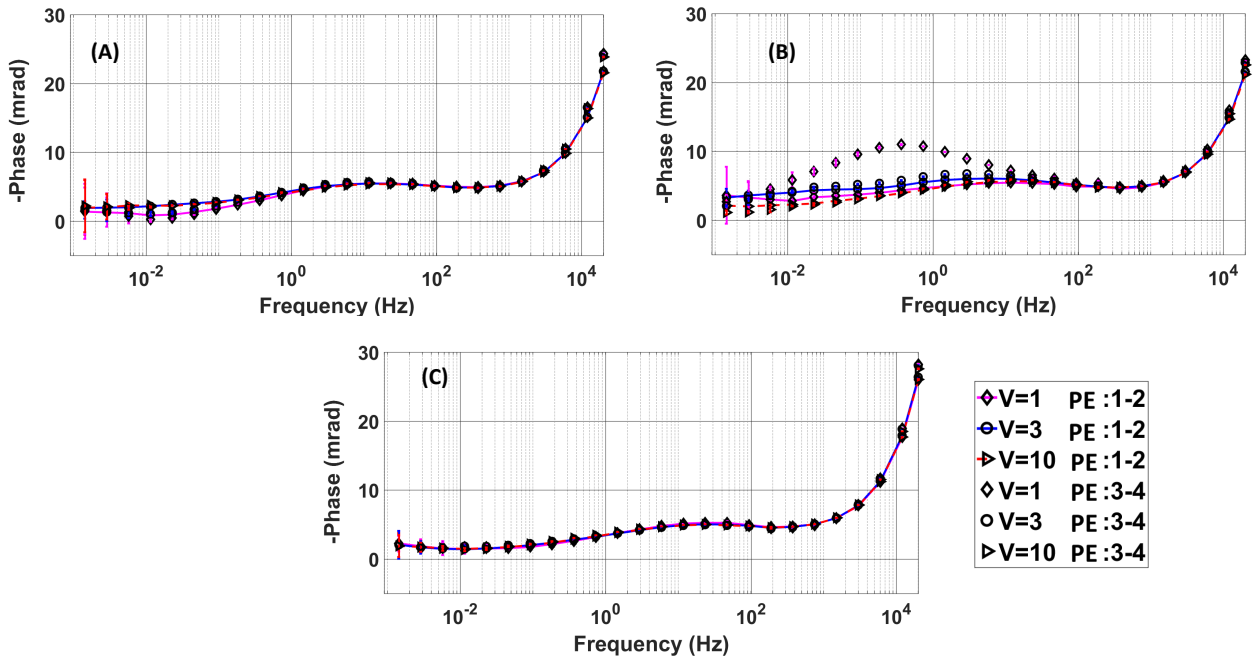


Figure 4.7 Measured phase lag spectra of saturated mortar for different current intensities (source voltages : 1 V, 3 V, 10 V) for the external electrode layout using aluminum-bronze plates with conductive gel (A), aluminum-bronze plates without gel (B) and stainless steel studs (C). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \Omega \text{ m}$ at $22 \pm 0.2^\circ \text{C}$.

4.3.2 Contact impedance test

The distribution of the electric current through the measurement system can be affected by the inhomogeneous contact impedance between the current electrodes and the surface of the samples. The lower this effect is, the higher is the accuracy of the electrical measurement.

This effect was investigated across a mortar sample (assumed to be homogeneous) by means of the internal and external potential electrode layouts (including two dipoles : PE :1-2, PE :3-4) for the three different current electrodes : (1) aluminum-bronze plates with conductive gel, (2) aluminum-bronze plates without gel and (3) stainless steel studs. It should be noted that in this test, the source voltage was maintained at 1 V. As shown in Figure 4.8A and Figure 4.9A, the contact impedance clearly affects the electric current intensity for both electrode layouts (external and internal). In this case, the electric current transmitted using aluminum-bronze plates with conductive gel is approximately constant and strong (500 μ A) in comparison with the other modes, which yielded lower (about half) variable current intensity. for the aluminum-bronze plates without gel and 200 for the stainless steel studs.

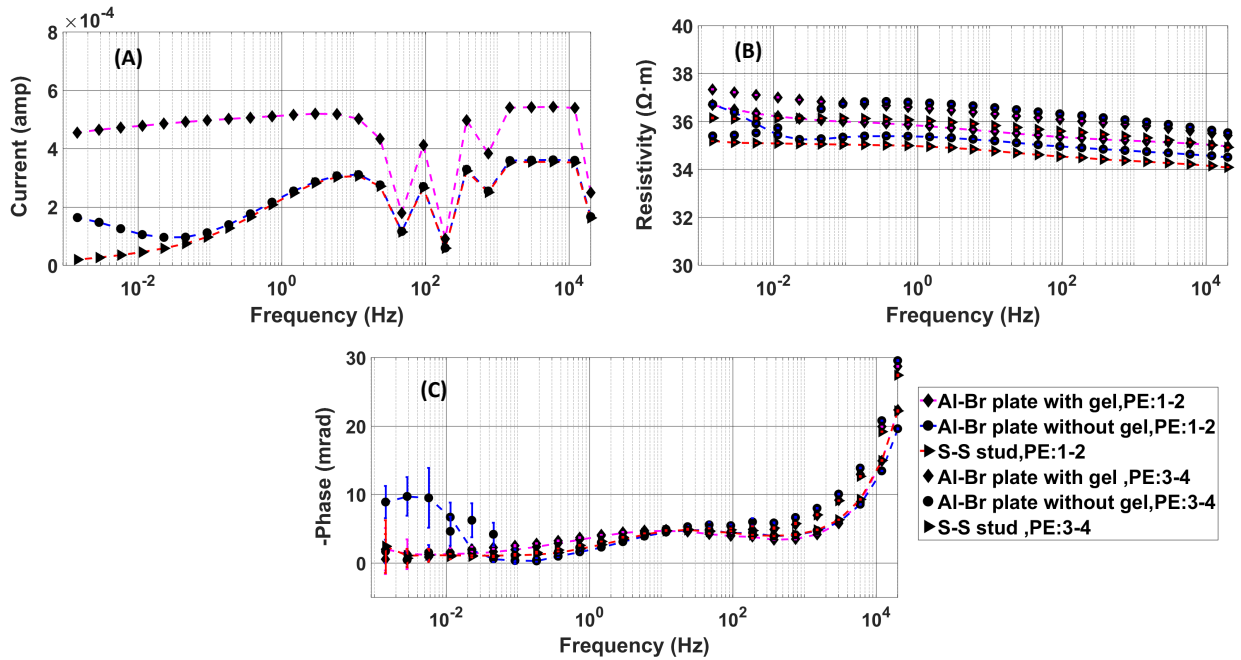


Figure 4.8 Effect of contact impedance on the SIP responses for measurement system using external receiver electrode layouts (PE :1-2, PE :3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Solution resistivity : $R_{hydrated\ lime} \cong 0.96 \pm 0.01 \Omega \cdot m$ at $22 \pm 0.2^\circ C$.

In addition, the resistivity responses showed similar behavior using aluminum-bronze plates with conductive gel and the stainless steel studs (Figure 4.8B, Figure 4.9B) for both internal dipoles (PE :1-2, PE :3-4) on opposite sides of the sample. In the case of the aluminum-bronze plates without gel, the results showed a different behavior of electrical resistivity for the external dipoles PE :1-2 and PE :3-4 in the low frequency range 0.001 Hz - 0.01 Hz (Figure 4.8B).

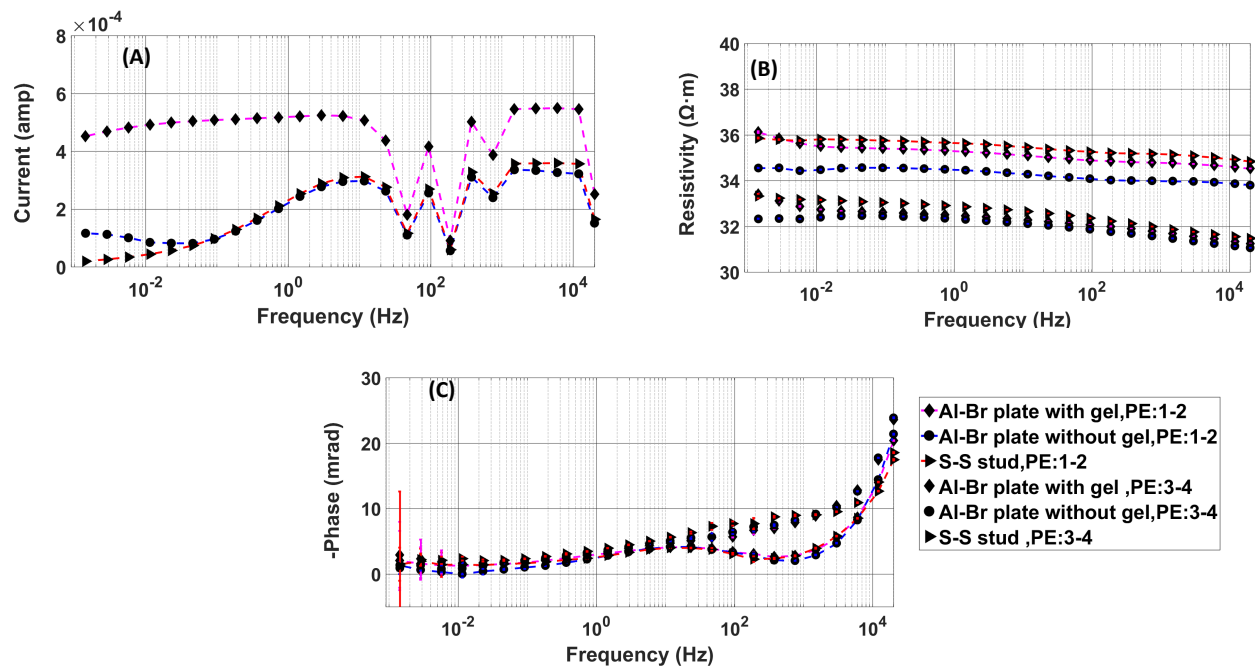


Figure 4.9 Impact of contact impedance on the SIP responses for measurement system using internal receiver electrode layouts (PE : 1-2, PE : 3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of the hydrated lime container solution is $0.96 \pm 0.01 \Omega \cdot m$ at $22 \pm 0.2^\circ C$.

The phase accuracy of the measurement system increased with decreasing contact impedance (Figure 4.8C and Figure 4.9C) using the aluminum-bronze plates with conductive gel for the external and the internal electrodes layouts (including symmetrical dipoles : PE :1-2, PE :3-4). In the case of current transmission using steel stainless studs for both electrode configurations, the error in phase lag increased around 5-10 mrad at low frequency (1.43 mHz-11 mHz). In addition, the phase lag measured with aluminum-bronze plates without gel showed a difference of 10 mrad between the symmetrical external dipoles PE :1-2 and PE :3-4 in the lower frequency range from 1.43 mHz to 23 mHz.

A previous study by Zimmermann et al. (2008) showed that in order to reduce the phase error further, the contact impedance must be small in relation to the sample impedance. Therefore, in order to increase the signal-to-noise ratio during the SIP measurement, it is advisable to use the aluminum-bronze plate with conductive gel as a current electrode with a smoother conductive contact to reduce its inhomogeneous contact impedance with the sample surface.

4.3.3 Effect of electrode sponge moisture

As described in Section 2.3, the non-polarizing silver chloride (Ag/AgCl) electrodes contain an internal sponge with a diameter of 32 mm that must be moistened with 3% KCl solution for an improved contact with the sample surface. The amount of solution in the sponge must be controlled to reduce the contact resistance and increase the signal-to-noise ratio of our electrical measurement system.

Figure 4.10 shows the electrical responses of four different sponge moisture contents (MC in g) : 1, 1.6, 3, 3.6. By increasing the amount of 3% KCl solution in the sponge of Ag/AgCl non-polarizing electrodes, the contact impedance decreased between the sponges surface and the concrete sample. At high MC (3, 3.6), the resistivity and phase lag have a non-similar behavior with a phase lag error reaching values of 5 to 10 mrad for both symmetrical dipoles (EP :1-2, EP : 3-4), specifically in the low-frequency range (1.43 mHz to 1 Hz) (Figure 4.10C).

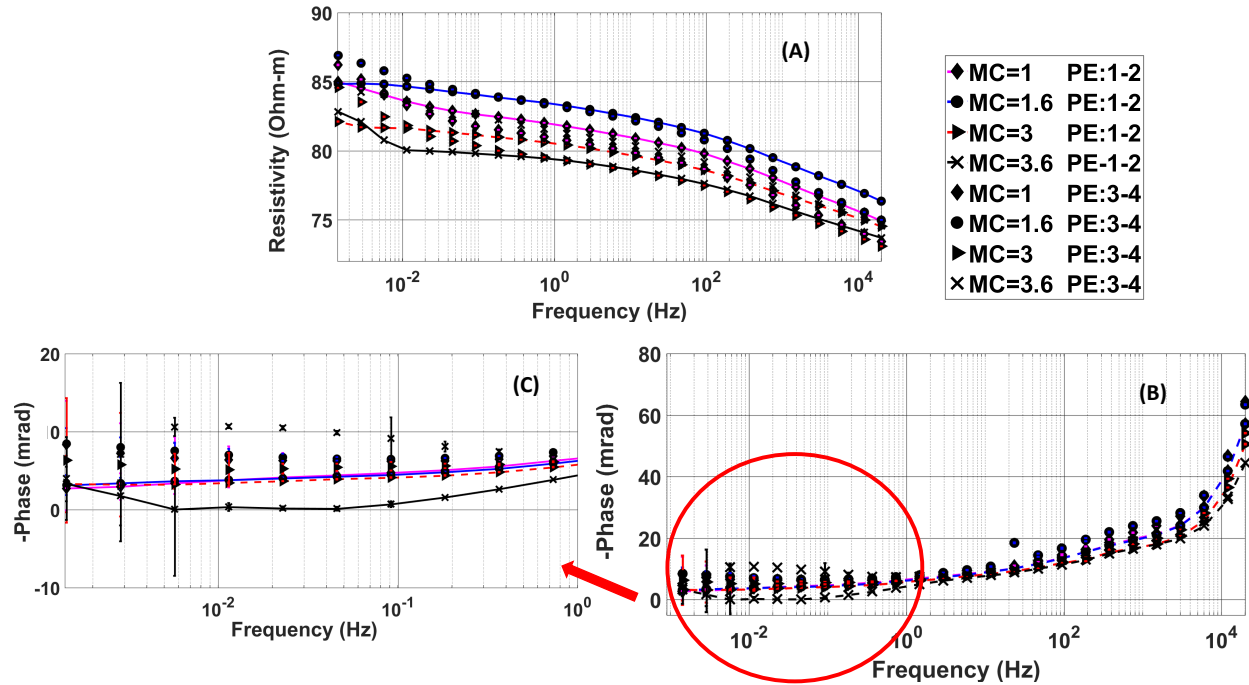


Figure 4.10 Impact of sponge moisture content (MC) on the complex resistivity measurement of concrete sample using Ag-AgCl potential electrodes for the external electrode layout (PE : 1-2, PE : 3-4). Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \Omega \text{ m}$ at $24 \pm 0.1^\circ \text{C}$.

Once the external factors i.e. the current density (the source voltage), the contact impedance, the electrode configuration, and electrode sponge moisture were controlled to avoid non-linear

effects and polarization error on our SIP data, a repeatability test was carried out using our system measurement. Figure 4.11 shows the SIP data collected on the concrete sample, which has been repeated 4 times continuously on both symmetrical sides of the sample at the same electrode positions without modifying the SIP device and the sample holder between each measurement (1.43 mHz-20 kHz). The source voltage was maintained at 1 V using aluminum-bronze plates with conductive gel.

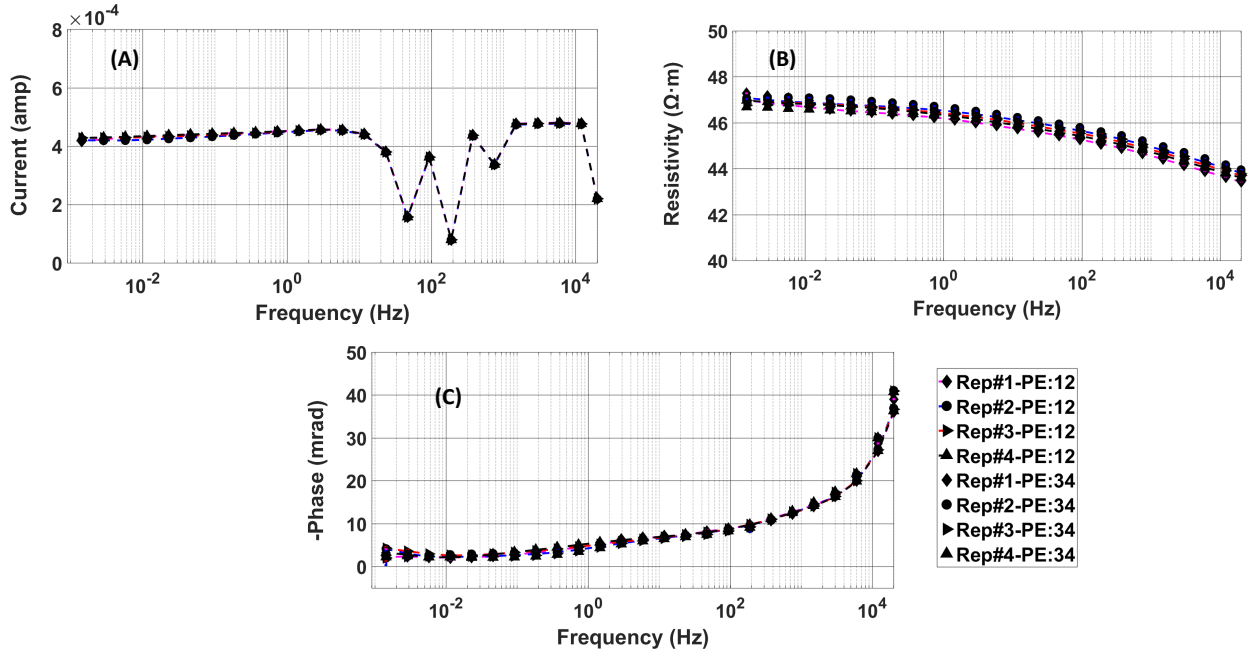


Figure 4.11 Measured electrical responses according to repeated measurements successively on a concrete sample at week 8 of curing without any change in the settings between each repetition. The SIP measurements were repeated 4 times (Rep : 1, 2, 3, 4) using the PE :1-2 and PE :3-4 dipoles. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \Omega \text{ mat } 24 \pm 0.1^\circ\text{C}$.

In summary, these results show that by controlling the applied voltage, the electrode contact impedance and the sponge moisture, our system allows highly precise SIP measurements using the SIP-Fuchs III system, with phase errors below 1 mrad and amplitude errors of 0.1% over a wide frequency spectrum (1.43 mHz-20 kHz). In order to analyze the accuracy of the fit and to validate our SIP measurement system, we applied the Bayesian Debye decomposition Python code developed by Bérubé et al. (Bérubé et al., 2017a) for fitting our data obtained from the repetition of our SIP measurements. It should be noted that these data were before corrected by reducing the impact of external factors (the current density, the

contact impedance, etc.) (Figure 4.11). As shown in Figure 4.12, the fitted model is obtained using the Bayesian Debye decomposition (DD) approach and the standard deviation is drawn over the measured SIP in the frequency range 1.43 mHz and 20 kHz. Except for data at 20 kHz with a very slight difference between SIP-data and fitted DD-model, all data show an excellent fit between the imaginary and real parts of the complex resistivity (Figure 4.12).

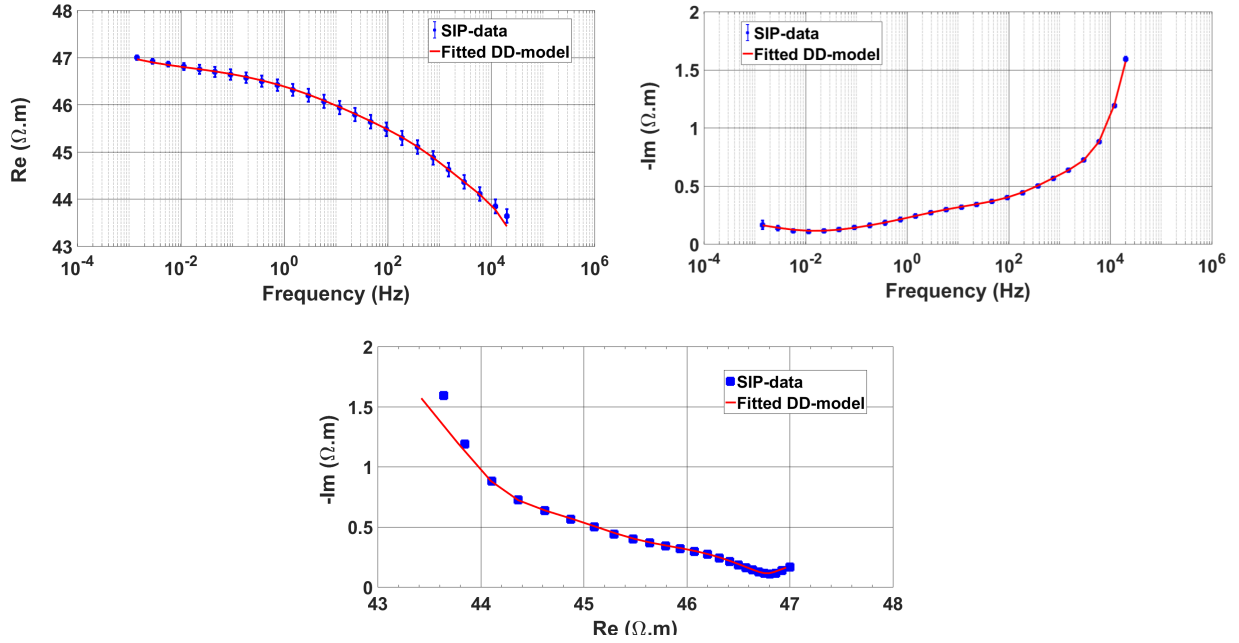


Figure 4.12 Real and imaginary resistivity spectra according to successively repeated SIP measurements on a saturated concrete sample at week 8 of curing over a wide frequency range from 1.43 to 20 kHz. The DD-model response is superimposed and fitted on the measured SIP responses with phase errors below 1 mrad and amplitude errors of 0.1% over the same frequency spectrum (1.43 mHz-20 kHz). Resistivity of tap water container solution is $1.18 \pm 0.01 \text{ } \Omega \text{ m}$ at $24 \pm 0.1^\circ \text{C}$.

4.4 Discussion

As previously mentioned, electrochemical impedance spectroscopy (EIS) is a traditional and suitable technique which has been, to date, used to monitor the electrical behavior and also to identify the interfacial effects in concrete (corrosion activity, cracks, chemical reaction). However, this technique is performed over a wide range (mHz-MHz), and calibration issues have limited its optimal use (Ford et al., 1995; Song, 2000; Ribeiro et al., 2015; Ribeiro and Abrantes, 2016). Also, the EIS system accuracy could be affected usually at the high end of the frequency range by measurement equipment or dispersion effect which makes the

capacitance expression more complicated (Song, 2000). Based on the research introduced by Ford et al. (1995), the potential electrode configuration could affect the EIS data accuracy, i.e. the error is significantly decreased in the case of external layout using three points and four-point electrodes.

The main objective of this work is to develop a laboratory measurement system in order to study the complex electrical properties of concrete samples for early detection of alkali silica reaction. Thus, we will deal with the relationships between the electrical responses (bulk resistivity, phase lag, chargeability, and relaxation time) and the electrochemical evolution of the concrete microstructure during the chemical reactions (ASR, hydration) related to the ionic exchanges (electrical double layer or EDL) (Revil and Florsch, 2010; Revil, 2013). Conductivity of the EDL inner part (Stern layer) is frequency-dependent and can be controlled by the charge density of the grain surface and the grain size distribution, which appears in the low frequencies ranging from 1 mHz to 100 Hz (Leroy et al., 2008). The relaxation time seems to be a key parameter to obtain information about the grain sizes or the pore throat lengths (Lesmes and Morgan, 2001; Leroy et al., 2008; Revil and Florsch, 2010). When the grain size increases, the relaxation frequency decreases and vice versa (Revil and Florsch, 2010). It should be noted that, by reducing the grain size, the polarization of electrical double layer (Stern layer) can be hidden by Maxwell-Wagner effect (interface polarization) at high frequencies ($f > 1000$ Hz) (Revil and Florsch, 2010). Nevertheless, in order to characterize the electrical behaviour of our heterogeneous concrete sample related to its broad grain size distribution (coarse aggregates 70% 10 mm to 20 mm and 30% from 5 mm to 14 mm), our attention focuses on using SIP method over a wide frequency range (1.43 mHz- 20 kHz). As will be presented extensively in our upcoming paper, the SIP data were fitted with a Debye decomposition model (DD) using the Bayesian Debye decomposition Python code developed by Bérubé et al. (Bérubé et al., 2017a) in order to determine the distribution of the chargeability (m) as a function of the relaxation time (τ) and DC resistivity (ρ_0). The total chargeability (Σm) and the mean relaxation time (τ_{mean}) of our polarization mechanism system were calculated from the relaxation time distribution (RTD) obtained using DD approach.

In this work, the four electrode configuration was applied to improve the signal-to-noise ratio; however, electromagnetic and capacitive couplings and Maxwell–Wagner polarization could affect SIP response above 1 kHz (Lesmes and Morgan, 2001). In our SIP measurements, the current density and the contact impedance of the electrodes were sufficiently low to avoid non-linear effects and polarization error. The important aspect of our SIP laboratory system design relates to its high measurement reproducibility and operation simplicity with a phase accuracy 0.1 mrad in the range from 1.43 mHz to 20 kHz, using a source voltage of 1 V applied to aluminum-bronze plates bonded to sample ends by conductive gel.

The SIP measurement using our sample holder also allowed to monitoring simultaneously the electrical responses for two axially orthogonal dipoles on the wall of mortar and concrete samples and characterizing more accurately the complex electrical behavior of a heterogeneous material.

4.5 Conclusion

This paper describes the tests performed with laboratory spectral induced polarization (SIP) to guarantee a phase lag measurement accuracy of 0.1 mrad over a frequency range of 1.43 mHz to 20 kHz. In order to control the signal-to-noise ratio, our protocol was done first on a homogeneous sample (mortar) before working on a more heterogeneous concrete sample. The results showed that the control and reduction of the contact impedance of current electrodes not only affect the resistivity behavior, but also the phase lag response of sample. Also, the resolution of our measurement system (signal-to-noise ratio) is increased due to the low contact impedance granted by the use of aluminum-bronze plates with conductive gel, and by the use of a source voltage of 1 V with current density lower than 10^{-3} A m^{-2} throughout the sample. In this regard, according to the structure of the measuring electrode, the high quantity of sponge moisture ($\text{MC} = 3$, $\text{MC}=3.6$) has a significant effect on the electrical responses. This also increases the phase error by 5 mrad to 10 mrad at low frequencies ($< 11 \text{ mHz}$). The results presented in this paper are to be considered for future work to study and to detect the complex electrical properties of chemical reactions (alkali-silica reaction, cement hydration) in concrete samples.

Acknowledgements

The authors would like to thank Étienne Bélanger and Louis-Pierre Barrette from Polytechnique Montreal, and Danick Charbonneau and Ghyslaine Luc from Université de Sherbrooke (Québec, Canada). The project was supported by grants from the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) to Pr. Chouteau, from the Centre de Recherche sur les Infrastructures en Béton (CRIB), and the international internships of the Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies (FRQNT) to Pr. Rivard.

**CHAPITRE 5 ARTICLE 2 : NON-DESTRUCTIVE NON-INVASIVE
ASSESSMENT OF THE DEVELOPMENT OF ALKALI-SILICA REACTION
IN CONCRETE BY SPECTRAL INDUCED POLARIZATION :
EVALUATION OF THE COMPLEX ELECTRICAL PROPERTIES**

Construction and Building Materials

Submitted April 12, 2019

Authors : Yasaman Khajehnouri ¹, Michel Chouteau ¹, Patrice Rivard², Charles L. Bérubé ¹

¹Polytechnique Montréal, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines,
Montréal, QC, Canada

²Department of Civil Engineering, Université de Sherbrooke, QC, Canada

Abstract

The distress caused by alkali-silica reaction (ASR) to concrete structures can occur long time after the reaction has been triggered. We propose to use spectral induced polarization (SIP) as a non-destructive method for early detection of ASR reaction before the damage is apparent. Our research deals with monitoring the difference between the electrical behaviour (phase lag, bulk resistivity, relaxation time, total chargeability) of non-reactive (NR) and reactive (RC) concrete samples affected by ASR. Laboratory measurements of complex resistivity were done in the frequency range 1.43 mHz-20 kHz. A Debye decomposition (DD) model was used to determine the DC bulk resistivity (ρ_0), and the distribution of the chargeability as a function of the relaxation time. The total chargeability (Σ_m) and the mean relaxation time (τ_{mean}) were computed as DD parameters to characterize the ASR development. While ρ_0 was strongly dependent on the electrical conductivity of the solution (water, NaOH) with a constant change with time, both concrete mixtures saturated with the same solution showed an increase ρ_0 due to the development of the matrix skeleton over time. In this work, ρ_0 did not play a significant role to characterize the ASR development. For the samples affected by ASR, a significant evolution of Σ_m and τ_{mean} was found compared to the non-affected mixtures (RC, NRC-H₂O), specially over the low frequency range [1.48 mHz < f < 5.86 Hz]. The RC-NaOH samples displayed a strong linear correlation between normalized chargeability and imaginary conductivity. This observation could be associated with an increase in surface conductivity of the Stern layer at reactive grain surface or the evolution of specific surface

area due to production of ASR silica gel, or both. Based on our conceptual electrochemical model of RTD presented in this work, an evolution of chargeability peak was observed at relatively long relaxation time $\tau > 10^2$ s that could be associated with the polarization of aggregates affected by ASR.

5.1 Introduction

The microstructure and pore structure are important factors in governing the mechanical properties of concrete, as well as its durability. Concrete is a highly heterogeneous material that comprises three main components : the hydrated cement paste, the aggregate skeleton and the interfacial transition zone (ITZ). The cement paste is composed of a network of capillary cavities and colloidal gel (C-S-H). The development of the alkali-silica reaction (ASR) evolves through several stages (Fournier and Bérubé, 2011; Bulteel et al., 2002; Lindgard et al., 2012; Saouma et al., 2015a) that leads to complexity of the concrete microstructure affected by this reaction. ASR reaction progresses with time by producing a hydrophilic and swelling gel in the presence of a sufficient level of moisture in the concrete (Thomas et al., 2013). The internal pressure developed by ASR gel may exceed the tensile strength of the cementitious matrix and lead to expansion, cracking and disruption of the hydrated cement (Moundoungou et al., 2014). The cracks allow moisture to get in and to be absorbed into the ASR gel, which promotes additional expansion and new cracks. Moreover, the chemical composition of ASR gel varies from its inner part to its outer part. This is related to the exchange of ions between the siliceous part of aggregates and the alkali hydroxides in the concrete pore solution (Cong et al., 1993). This silica gel is porous with high specific surface containing many hydrophilic groups (e.g. OH-, NaO-, and -O-) (Hou et al., 2004; Prezzi et al., 1997). The physical properties of the ASR gels vary from viscoplasticity to viscoelasticity through the chemical reaction, and depend mainly on the water content of ASR gel and on the chemical concentration of its components (e.g. sodium, potassium, calcium, hydroxide and silica) (Ghanem et al., 2012). The less viscous gels are more likely to cause the expansion phenomena that lead to fractures in ASR-affected concrete, whereas the aqueous gels are more fluid, and can easily penetrate through the cracks (Swamy, 1991).

A number of papers have been focused on the study of concrete expansion versus the alkali-rich ASR gel (Rodrigues et al., 1999; Fournier and Bérubé, 2000; Bulteel et al., 2002; Ichikawa and Miura, 2007; Saouma et al., 2015b). Other authors (Comi et al., 2014; Rodrigues et al., 1999) have characterized and predicted the degree of concrete expansion using the measurements of charge density at the surface of amorphous silica according to the Electric Double Layer (EDL) model. As part of the diagnosis of the ASR reaction, numerous works were carried out on observation of the ASR products by gel fluorescence testing (Natesaiyer, 1993;

Lesnicki et al., 2013), examination of petrophysical properties (Monnin et al., 2006; Bleszynski and Thomas, 1998) and mineralogical structure (Deloye and Divet, 1992), and by energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) (Hou et al., 2004; Grattan-Bellew and Chan, 2013; Frybort et al., 2018).

In general, it is possible to visually characterize the ASR cracks that are caused by the expansion of concrete several months to several years later after its placement (Lamond and Pielert, 2006). Besides, laboratory studies such as mineralogical and petrographic analysis can be performed on a limited volume of samples taken from the damaged structures. This will slow down the testing process and reduces its efficiency specially to define the degree of ASR development before the damage is apparent. Under these circumstances, it is difficult to find a reliable method which allows the detection of ASR before the appearance of fractures in damaged concrete. A major challenge is the detection of the ASR development at an early stage. For this reason, the industry requires an early warning non-destructive method to determine the risk of this reaction before any external or internal ASR symptoms.

In recent years, spectral induced polarization (SIP), also known as electrical impedance spectroscopy (EIS), is recognized as a fast and non-destructive technique for material characterization (compared to other techniques used for the assessment of concrete structures). It has been used to study corrosion activity in reinforced concrete (Jasniok, 2013; Jolivet et al., 2007; Castela et al., 2014), detect the time of cracking, the approximate number and location of cracks on the surface of concrete (Pour-Ghaz and Weiss, 2011), assess the electrical properties of surface treatments on concrete (Syropoulou and Buenfeld, 2005), determine the relationship between chloride migration and impedance spectroscopy on mortar samples (Loche et al., 2005), monitor the changes of the microstructure during an ionic migration experiment in concrete (Sanchez et al., 2008), monitor the hydration products of Portland cement mortars (Cruz et al., 2013) and study the behaviour carbonation of cement mortar (Dong et al., 2014).

The main goal of this paper was to evaluate the performance of the SIP method in order to monitor the difference of spectral signatures i.e. bulk resistivity (ρ_0), phase lag (φ), relaxation time (τ) and chargeability (m), between reactive (RC) and non-reactive (NRC) lab concrete submitted to accelerate test conditions. Our paper deals with the relationships between the complex electrical resistivity responses (ρ_0 , φ , τ and m) and the electrochemical evolution of the concrete microstructure through the ASR development related to the ionic exchanges (EDL) between the solution and the grains surface.

We first introduce the principles of spectral induced polarization, the theory of the EDL to explain the electrochemical mechanism at grain surface of materials (concrete, soil) when it

is exposed to a fluid (water, alkaline solution), and we present an overview of the concepts behind ASR that affects the microstructure and the electrical properties of concrete. Then, we present experimental results, namely electrical bulk resistivity, phase lag, relaxation time distributions and integrating parameters of Debye decomposition, and finally we discuss the potential of the SIP method to distinguish between electrochemical responses of the complex microstructure of both concrete (reactive and non-reactive).

5.2 Spectral induced polarization

5.2.1 Principle

The complex electrical resistivity, also known as electrical impedance, of concrete is measured over a frequency range [1 mHz-20 kHz] using the SIP method. The real part of complex resistivity reflects the ability of the liquid and solid phase in cement-based materials (concrete) to transmit electric charges through the interconnected pore space which can be influenced by electrical conductivity of pore solution (σ_{el}). The imaginary part of complex resistivity reflects the capacity of the porous material to store electrical charges in a reversible manner (polarization phenomena) which can be determined by the surface conductivity (σ_{surf}), the electrical double layer at grain-electrolyte interfaces (mobility, concentration, and distribution of the charge carriers) and pore connectivity (permeability). According to the model suggested by Vinegar and Waxman Vinegar and Waxman (1984), the real part primarily depends on the bulk conductivity of the saturated matrix (σ_{bulk}) as well as the surface conductivity (σ'_{surf}) related to the electrolyte / solid interface. The bulk conductivity depends on the pore solution conductivity (σ_{el}) and on the matrix microstructure. Usually it is expressed by Archie's law (Archie, 1942). The imaginary part depends on the surface conductivity (σ''_{surf}) and the polarization phenomena at the interface. The measured complex conductivity is given by

$$\sigma^*(\omega) = \sigma_{bulk} + \sigma'_{surf}(\omega) + i\sigma''_{surf}(\omega), \quad (5.1)$$

Where the angular frequency (ω) is related to the measurement frequency f by $\omega = 2\pi f$ and i denotes the imaginary unit ($i = \sqrt{-1}$). By considering Equation 5.1, the phase lag φ (index of polarization phenomena in electrical double layer) becomes

$$\varphi = \tan^{-1} \left(\frac{\sigma''_{surf}(\omega)}{\sigma_{bulk} + \sigma'_{surf}(\omega)} \right). \quad (5.2)$$

It should be noted that here, the electrical bulk resistivity (ρ) was considered (it is the inverse of electrical conductivity; $\rho = \frac{1}{\sigma}$).

5.2.2 The electrical double layer

In the condition of the SIP measurement at low frequency ($f < 100$ Hz), the polarization responses of material can be influenced by membrane polarization (the constriction within a pore channel or in the presence of clay particles) and an electrochemical polarization surrounding the insulating grains. Previous studies (Vinegar and Waxman, 1984; Revil, 1999; Revil and Florsch, 2010; Revil and Skold, 2011; Revil et al., 2012; Revil, 2013) showed that the imaginary part of the surface conductivity is associated with the ionic conductivity within the EDL that is generated at the surface of the grains in the presence of an external electric field. When the electric field is applied through the double layer area, the cations move in the direction of the electrical field and finally accumulate at the edge of the grain. If the injected current is shut off, the EDL discharges and the ionic balance is restored by ion diffusion. The resulting electric potential difference decreases continuously as the ions reach equilibrium in the electrolyte. This process is responsible for the measurable induced polarization (IP) effect.

The EDL has two electrochemical contributions : (1) the conductivity of the Stern layer and (2) the conductivity of the diffuse layer. The surface conductivity of the latter is frequency-independent and controlled by the conductivity of the interstitial solution in the materials (concrete, soil, rocks). The conductivity of the Stern layer is a frequency-dependent and can be related to the imaginary part of the complex conductivity (Revil and Florsch, 2010). The polarization of this layer mainly appears in the low frequencies ranging from 1 mHz to 100 Hz that is controlled by the charge density Q_v coating the grain surface and the grain size distribution (Leroy et al., 2008; Revil and Florsch, 2010).

At high frequencies ($f > 100$ Hz), the imaginary part can be influenced by the dielectric permittivity of the medium and by the Maxwell-Wagner polarization in the case of heterogeneous material (Leroy et al., 2008). The latter is associated with the charge accumulation (blocking of ions) at the interfaces solid-liquid-air which causes an electrical discontinuity. The Maxwell-Wagner polarization is also controlled by the surface conductivity, the formation factor (F) and the dielectric properties of the different phases of the porous materials (Chen and Or, 2006; Revil and Florsch, 2010).

Recently, Leroy et al. (2008), Revil and Florsch (2010) proposed the following complex surface conductivity model for a granular porous medium :

$$\sigma_s^* = \frac{4}{d_0}(\Sigma^d + \Sigma^s) - \frac{4}{d_0} \left(\frac{\Sigma^s}{(1 + i\omega\tau_0)} \right), \quad (5.3)$$

Where Σ^d and Σ^s are respectively the specific surface conductivity of the diffuse layer and the

specific surface conductivity associated with the Stern layer (in S), ω is the angular frequency in (rad.s^{-1}) and d_0 is the grain diameter (in m). For a narrow distribution of grain size, d_0 is replaced by an effective grain diameter. Based on the works introduced by Slater and Lesmes (Slater and Lesmes, 2002) and Revil et al. (Revil and Florsch, 2010), this effective grain diameter is selected as d_{10} (grain size at which 10% of the sample weight is finer). d_{10} was considered as a good approximation in order to predict the permeability which is controlled by a dominant small pore size (Slater and Lesmes, 2002; Revil and Florsch, 2010). τ_0 (in s) is the main relaxation time constants that is required to establish a stationary ionic distribution in the Stern layer coating a grain of diameter d_0 under the presence of an applied electrical field. As suggested by Lesmes and Frye Lesmes David P. and Frye Kevin M. (2001) and Revil and Florsch Revil and Florsch (2010), the relaxation time of a granular material is given by :

$$\tau_0 = \frac{d_0^2}{8D}, \quad (5.4)$$

where D is the diffusion coefficient of the ions in the Stern layer (in m^2/s).

Following the model from Revil et al. (Revil et al., 2012), the relaxation time can also be calculated according to

$$\tau_0 = \frac{\Lambda^2}{2D}, \quad (5.5)$$

where Λ is the pore radius between the grains.

The relaxation time seems to be a key parameter to obtain information about the grain sizes or the pore throat lengths (Lesmes David P. and Frye Kevin M., 2001; Leroy et al., 2008; Titov et al., 2010; Revil and Florsch, 2010). It should be noted that, for fine grain size, the polarization of Stern layer can be hidden by Maxwell-Wagner effect (interface polarization) at high frequencies ($f > 100$ Hz) (Revil and Florsch, 2010).

5.2.3 SIP inversion

Once the complex resistivity measurement of concrete samples has been completed, the SIP data were fitted with a Debye decomposition model (DD) to determine the distribution of the chargeability (m) as a function of the relaxation time (τ), and the DC bulk resistivity (ρ_0). The total chargeability (Σm) and the mean relaxation time (τ_{mean}) of our polarization mechanism system were calculated from the resulting DD model. The Debye decomposition was introduced by Nordsiek and Weller Nordsiek and Weller (2008) as :

$$\rho^*(\omega) = \rho_0 \left(1 - \sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \left(1 - \frac{1}{1 + i\omega\tau_k} \right) \right). \quad (5.6)$$

Where (m_k) denotes the chargeability and (τ_k) is the characteristic relaxation time for each of the n_τ superimposed relaxation modes that form the relaxation time distribution (RTD). k represents the k relaxation mode that is superimposed on the SIP responses. In this study the SIP inversion is performed using the Bayesian Debye decomposition Python code developed by Bérubé et al. (Bérubé et al., 2017a). This approach allows the optimal parameters and their confidence intervals to be estimated from the SIP measurements and associated uncertainties.

The approach assumes that a large number of relaxation modes are superimposed (for example up to $n_\tau=1000$) and removes the ambiguity in the obtained parameters such as the chargeability (m_k) and relaxation time (τ_k) . In this case, the optimal parameters and their uncertainties are estimated based on the measurements and their errors.

The SIP inversion results consist in the distribution of chargeabilities according to their corresponding relaxation times, which allows the evaluation of Σm , τ_{mean} , and Peak relaxation times (τ_{peak}) . Σm is the sum of all the values of chargeability $(m_k : m_1, m_2, m_3, \dots, m_n)$ associated with each corresponding relaxation time spectrum $(\tau_k : \tau_1, \tau_2, \tau_3, \dots, \tau_n)$ (Nordsiek and Weller, 2008; Weller et al., 2013) :

$$\Sigma m = \sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \quad (5.7)$$

The mean logarithmic relaxation time (τ_{mean}) denotes the chargeability weighted logarithmic mean value of the relaxation times (Nordsiek and Weller, 2008) :

$$\tau_{mean} = \exp\left(\sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \log(\tau_k)\right) / \sum_{k=1}^{n_\tau} m_k \quad (5.8)$$

5.3 Material and methods

The tested samples consisted of twelve reactive concrete (RC) and twelve non-reactive concrete (NRC) cylinders (76 mm \times 190 mm). The composition of concrete mixtures is presented in Table 6.1. The total alkali content Na_2O_{eq} of both mixtures was boosted to 4 kg/m³ (0.95% of cement mass) to accelerate the reaction rate. The reactive concrete samples were made with a coarse aggregate from Placitas (New Mexico, USA). The main reactive minerals are chert, chalcedony, and quartz. The non-reactive aggregates used for NRC samples were from Saint-Dominique quarry located in Saint-Hyacinthe (Quebec, Canada); they mainly consist of limestone and dolomite. All samples contained aggregates with sizes 10-20 mm (70 %) and with sizes 5-14 mm (30 %).

The sand used comes from the Saint-François quarry (Quebec, Canada) it consists mainly

Tableau 5.1 Concrete mixture. W/C : water–cement ratio.

Mixtures	Reactive	Non-Reactive
Cement (kg/m ³)	420	420
Sand (kg/m ³)	887	887
Coarse aggregates (kg/m ³)	965	850
Water (kg/m ³)	210	210
W/C	0.5	0.5
Na ₂ O _{eq} (kg/m ³)	4	4

of quartz with particle size ranging from 0.08 mm (3%) to 5 mm (96%). Stainless steel reference studs were fixed at both ends of the samples for length expansion measurements (CSA A23.2-14A Canadian standard) and complex electrical resistivity monitoring.

The samples were maintained in a saturation condition for ASR development at 60° C ; twelve samples were immersed in a 1 N NaOH solution and the twelve others were immersed in tap water (H₂O). After immersion in the solution for reaching full saturation, the sample containers were taken out of the oven. When the concrete temperature reached the ambient temperature of the laboratory (after 24 h), the complex electrical resistivity of the concrete samples was measured over the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz]. This process was repeated every week (for RC : from weeks 1 to 22 ; for NRC : from weeks 1 to 27). The measurement protocol allowed monitoring the sample responses using our laboratory experimental set-up (Khajehnouri et al., 2019) based on the SIP Fuchs III system (Radic Research, Germany). The samples were covered with a latex membrane to maintain their saturation rate and keep them from drying during measurement time (for further details, see (Khajehnouri et al., 2019)).

5.4 Experimental Results

5.4.1 SIP measurement

Our measurement system allowed determining the electrical impedance across the concrete samples (reactive and non-reactive) by using four receiver electrodes (external layouts) placed symmetrically with regards to the middle of the sample length. Given that our electrical measurements showed a similar behaviour for two symmetrical dipoles (PE :1-2, PE :3-4), only the data measured from dipole PE :1-2 are presented here and used to compare the SIP laboratory results from the various samples in this paper.

As shown in our previous work (Khajehnouri et al., 2019), in order to yield significant impedance responses at low frequencies (1.43 mHz -20 kHz), the accuracy of the SIP measurement system (sample holder, current electrodes, potential electrodes, etc.) was obtained by using aluminum-bronze plates as current electrodes connected to the end faces of the sample. The contact resistance reduced using a conductive gel inserted between the plates and the sample. The electric current was transmitted throughout the concrete cylinder by applying a source voltage of 1V resulting in a current density lower than 10^{-3} A m^{-2} .

The time-lapse SIP measured data will now be presented in two different ways. First, we will show the responses of the RC samples saturated with two different solutions and then the responses of the NRC samples saturated with the same solutions. Secondly, the responses of the RC and NRC samples in the NaOH solution, and then, the responses of the NRC and RC samples in water will be presented. The first type of display allows observing the impact of two types of saturating electrolytes on the same type of concrete, the second, the impact of one electrolyte on the two types of concrete. As the complex resistivity of the samples depends on the resistivity of the saturating solutions, it is of utmost importance tracking the solution resistivity as well as their temperature in time. Figure 5.1 displays the recorded resistivity versus time for both solutions for each container holding RC and NRC samples. Water resistivity started at 2.0 ohm.m for week 1 and decreased at about 1.25 ohm.m at week 4, remaining approximately constant then until week 22 (Figure 5.1a). For the 1 N NaOH solution, we have observed two behaviours, one for NRC samples and one for RC samples. The resistivity for both solutions started at $0.058 \Omega.m$ at week 1 and then gradually increased with time to reach $0.067 \Omega.m$ for NRC and $0.08 \Omega.m$ for RC at week 22 (Figure 5.1b). The impact of those slight changes in the resistivity of the solutions on the experimental data will be addressed later in the discussion of the results.

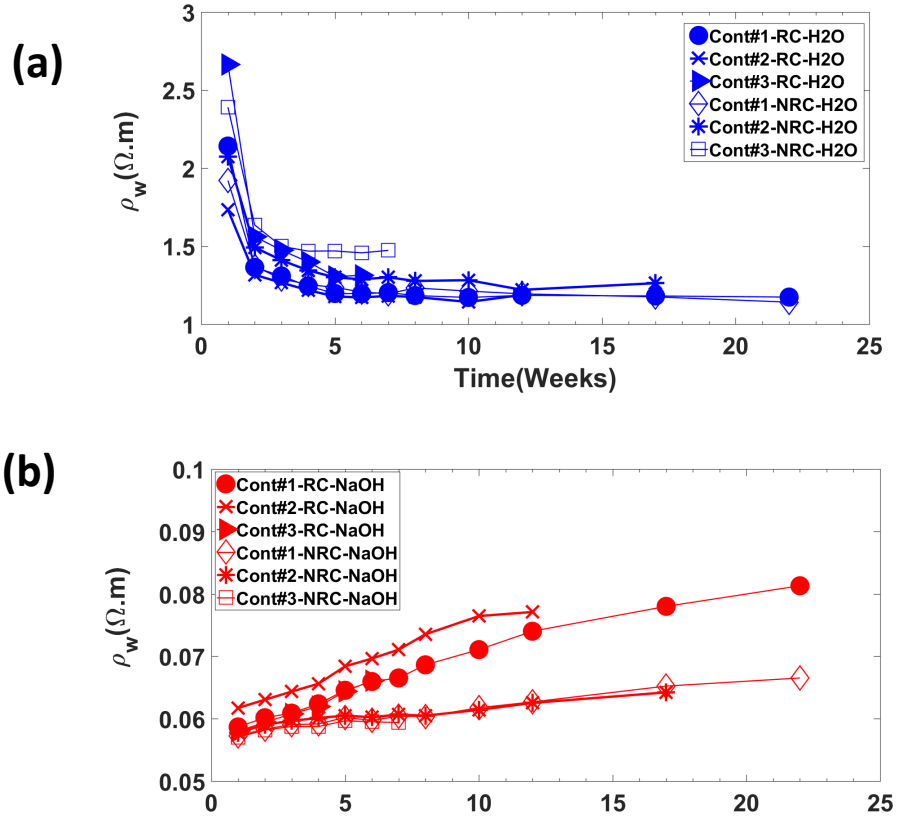


Figure 5.1 Monitoring the resistivity of container solution; a) water (H₂O), b) 1 N NaOH over 22 weeks for the reactive and non-reactive concrete samples.

Figure 5.2 displays the SIP responses, electrical resistivity (ρ in $\Omega.m$) and phase lag (φ in mrad), measured for the RC samples in the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz] over a period of 22 weeks. It is important to note that the number of measured responses decreased from 6 (week 4) to 2 (week 22) for RC samples in NaOH solution and RC in water. As mentioned in the paragraph above (3. Material and methods), as time progressed one sample at a time was removed from monitoring to perform destructive testing and mineralogical analysis. Within each group of samples (RC-NaOH and RC-H₂O), measured responses were almost identical demonstrating that observation was repeated for similar material composition and saturating solution. As expected, the electrical resistivity of concrete samples is more dependent on the salinity of the solution ($\rho_{(\text{NaOH-concrete})} < \rho_{(\text{H}_2\text{O-concrete})}$), the samples saturated with water showed a higher overall resistivity than the one saturated with the NaOH solution. An increasing trend in electrical resistivity was observed for the reactive specimen saturated with water from 50 $\Omega.m$ (week 4) to 80 $\Omega.m$ (week 22). The reactive specimens saturated with the NaOH solution showed a 100% increase (20 to 40 $\Omega.m$) over a

period of 22 weeks.

The observed increase can be explained in terms of reduced connected porosity due to precipitation of low solubility solids produced by chemical reactions (cement hydration and possibly ASR) with time (Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013; Dong et al., 2014). The phase lag of RC samples saturated with water remained constant with time within 5 mrad, whereas the phase lag of NaOH-RC samples showed a strong increase from 5 mrad (week 4) to 30 mrad (week 22) at low frequencies ($f < 1$ Hz) (Figure 5.2).

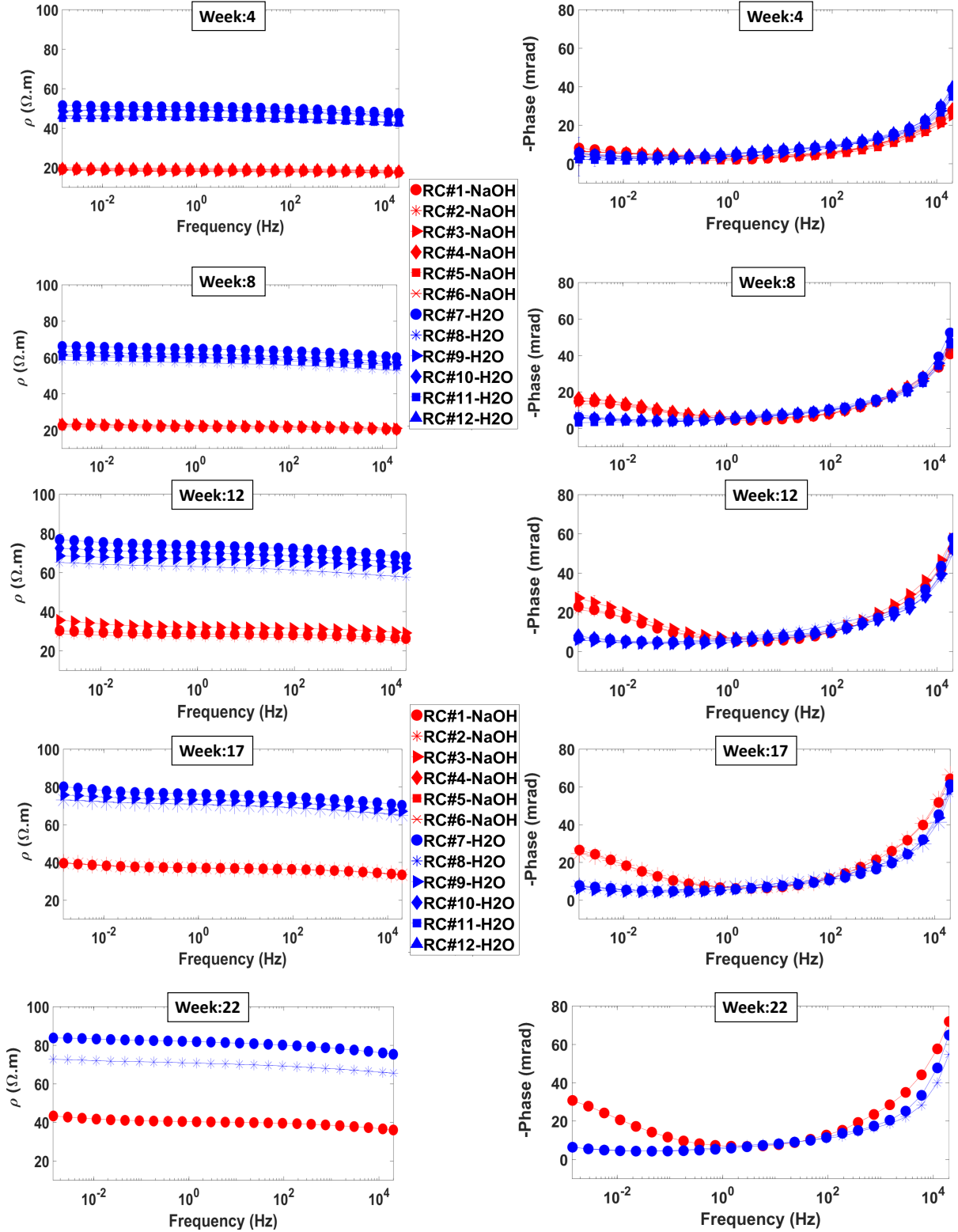


Figure 5.2 Monitoring the measured resistivity and phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples saturated with water (RC-H₂O : solid blue symbols) and in NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{NaOH} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{H_2O} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.

Figure 5.3 displays SIP data measured for the NRC samples saturated with water and the NaOH solution over the whole frequency range [1.43 mHz-20kHz] over 22 weeks. Again, note that the number of measured responses decreased from 6 (week 4) to 2 (week 22) for NRC samples in NaOH solution and RC in water. As observed previously for the RC mixture, samples saturated with the more conductive NaOH solution showed a smaller resistivity overall than the water-saturated samples. The electrical resistivity of NRC saturated with water displayed a gradual increase from $40 \Omega.m$ (4th week) to $80 \Omega.m$ (week 22) over the whole frequency range [1.43 mHz-20 kHz]. In the same way NaOH-saturated NRC samples showed a 100% gradual increase in resistivity (20 to $40 \Omega.m$). As mentioned previously, this behaviour could be related to the reduction of connected pore volume due to the microstructural modifications of concrete (porosity, tortuosity, etc.) during the chemical reactions. The phase lag of NRC mixture saturated with water stayed unchanged with time (see Figure 5.3). For the NRC samples saturated with the NaOH solution, the phase lag remained relatively constant from weeks 4 to 12, then it increased by about 5-10 mrad from weeks 17 to 22 for frequencies between 1.43 mHz and 45 mHz (Figure 5.3).

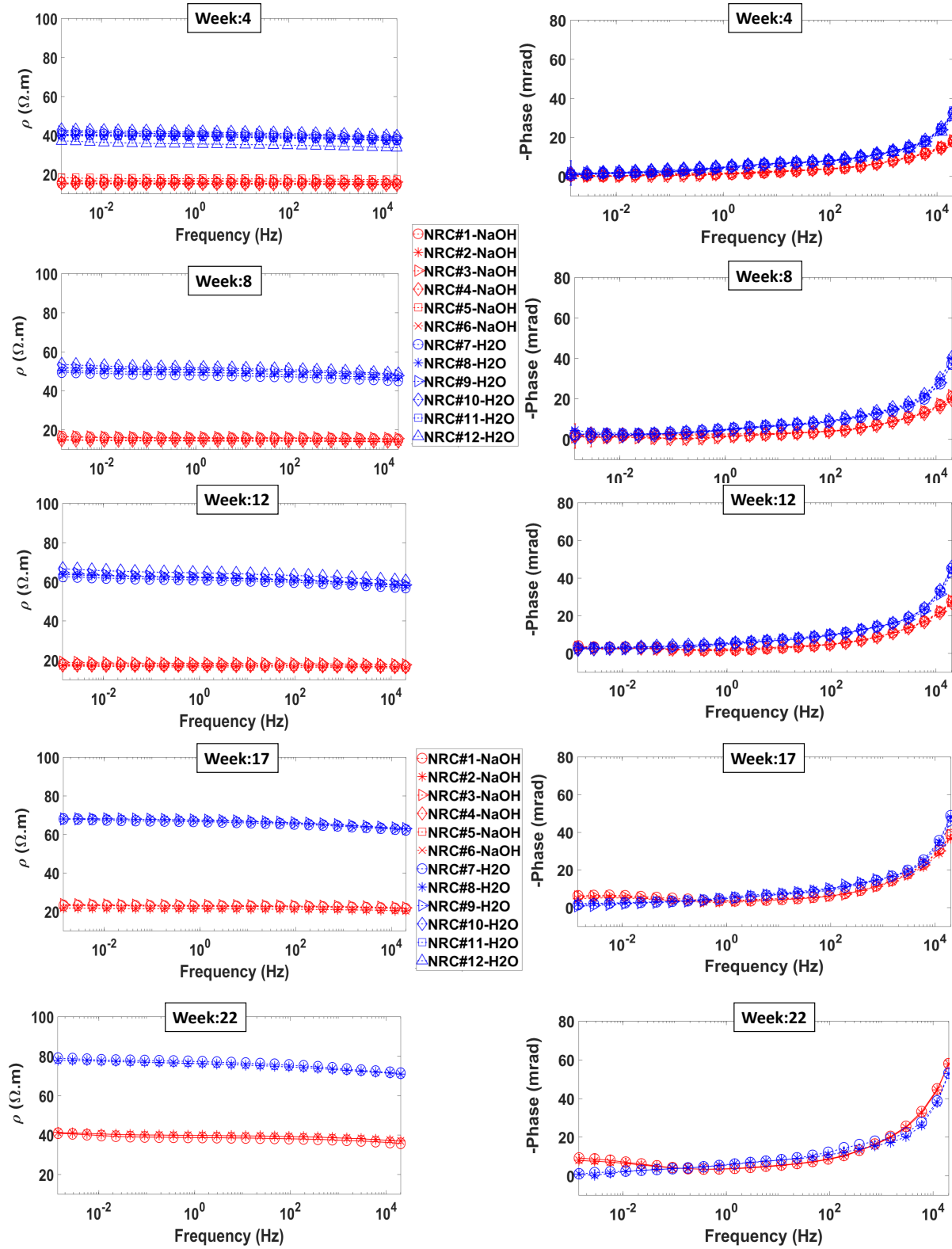


Figure 5.3 Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the non-reactive concrete samples saturated with water (NRC-H₂O : blue hollow symbols) and (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{\text{NaOH}} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ and $\rho_{\text{H}_2\text{O}} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.

In Figure 5.4, both concrete mixtures (RC, NRC) saturated with the NaOH solution displayed an increase in resistivity with time; however this increase was not the same for both. For RC-NaOH samples, the rate of change was greater than the one of NRC mixtures from weeks 4 to 17. At week 22, both concrete mixtures reached a similar magnitude and suggests that the NRC sample exhibited a large positive jump in resistivity from weeks 17 to 22. The phase lag for frequencies <1 Hz showed a significative difference in the evolution from weeks 4 to 22. The RC mixture displayed a rapid increase by about 5-30 mrad between weeks 4 and 22, whereas the NRC mixtures saturated with the same solution (NaOH) displayed a phase lag of only 5-10 mrad from weeks 17 to 22. Also, we have observed an increase in phase lag for high frequencies ($f > 100$ Hz) that was correlated with the increase of electrical resistivity of concrete samples (RC, NRC) over a period of 22 weeks. This may result from the increase in the ratio $\omega\epsilon/\sigma$ estimating the dielectric (imaginary) contribution with regards to the galvanic (real) contribution in the sample resistivity (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2013).

The electrical resistivity and phase lag measured from the NRC and RC samples saturated with water are depicted in Figure 5.5. The results showed a similar evolution of electrical resistivity for both mixtures. There was an overall gradual increase in resistivity from 50 ohm.m to 80 ohm.m during the 22 weeks monitoring. The phase lag data showed an identical response for both mixtures at different times, except for the low frequency part ($f < 100$ Hz) of the RC samples starting at week 17 that showed a slight departure of ~ 5 mrad.

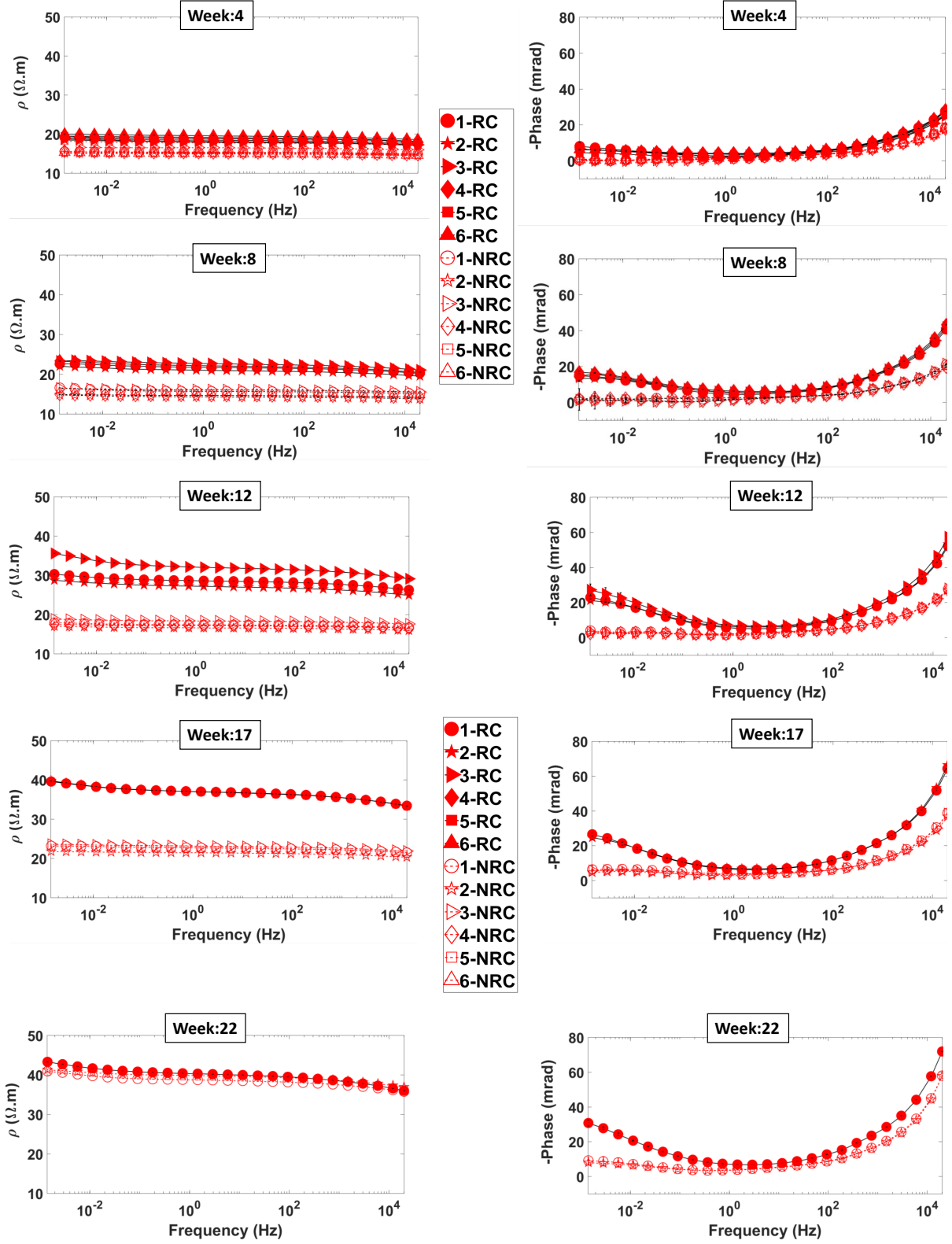


Figure 5.4 Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples (RC : solid red symbols) and the non-reactive ones (NRC : hollow red symbols) saturated with the NaOH solution. The container solution resistivity values were $\rho_{RC-NaOH} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{NRC-NaOH} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively.

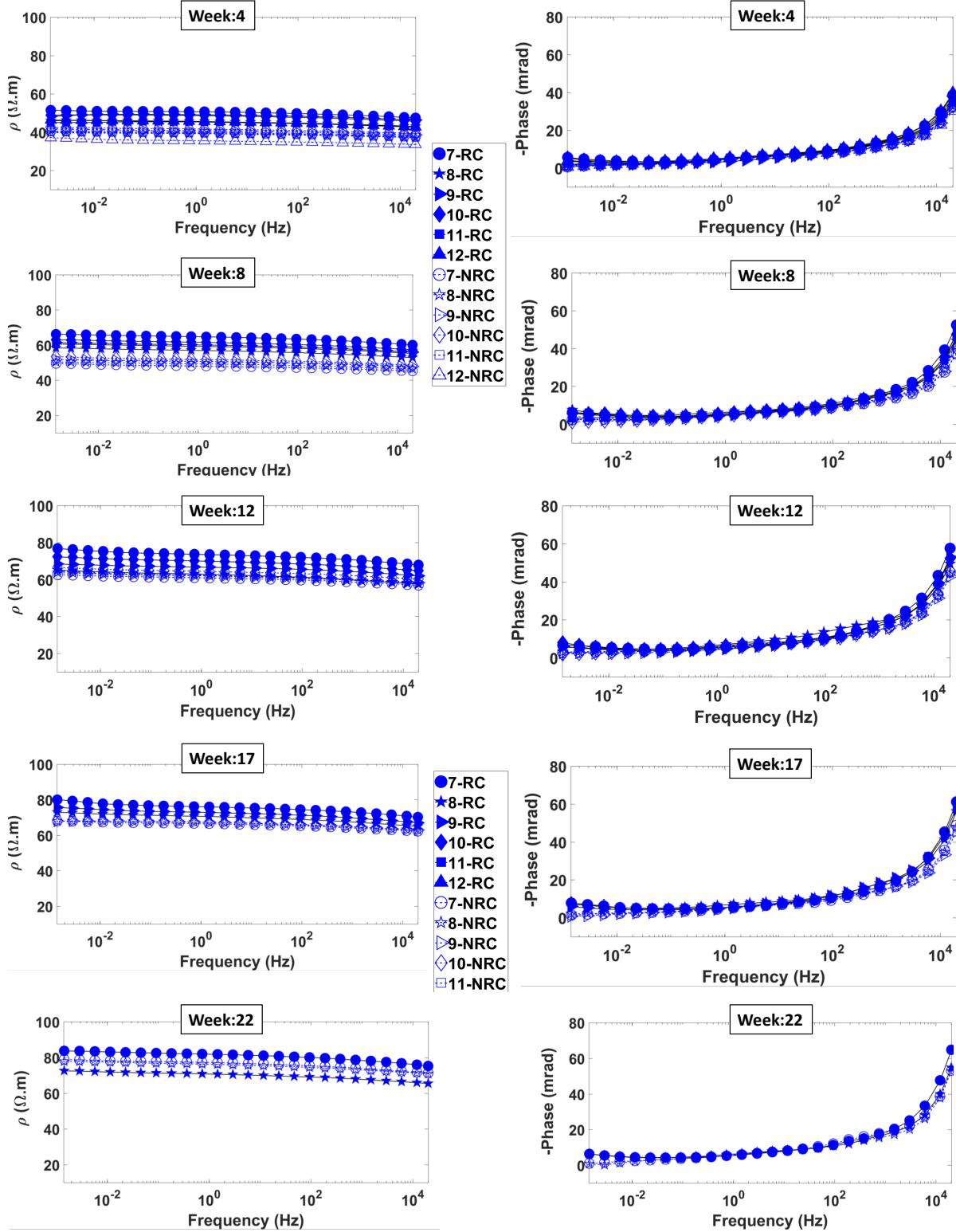


Figure 5.5 Monitoring the measured resistivity and the phase lag responses over 22 weeks for the reactive concrete samples (RC : blue solid symbols) and the non-reactive ones (NRC : blue hollow symbols) saturated with water. The container solution resistivity values were $\rho_{RC-H_2O} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ and $\rho_{NRC-H_2O} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at $24^\circ C$, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.

5.4.2 Debye decomposition

Relaxation time distribution

The relaxation time distributions (RTD) of concrete samples were calculated by processing the SIP responses with the Bayesian Debye decomposition (DD) approach published by Bérubé et al. (Bérubé et al., 2017a).

Figure 5.6 shows RTDs of the RC and NRC samples saturated with water (RC-7-H₂O, NRC-7-H₂O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH, NRC-1-NaOH) over the whole frequency range [1.43 mHz - 20 kHz] from weeks 1 to 22. It should be noted that all concrete samples made with the same mixture and saturated with the same solution showed very similar behaviours of relaxation time distributions with time. In order to better compare the electrical responses, the RTD results of four samples (2 RC and 2NRC) out of 24 saturated with two different solutions (NaOH, water) are displayed (RC-1 and NRC-1 in NaOH, RC-7 and NRC-7 in H₂O). Those four samples were monitored for the longest period (22 to 27 weeks) before being destructively tested for mechanical and petrographic analysis. For $\tau < 0.01$ s chargeabilities were similar to all samples, from weeks 1 to 22, indicating no important changes in concrete microstructure. For $\tau > 0.01$ s, chargeabilities for RC and NRC in NaOH were smaller than the ones for RC and NRC in water at week 1. All chargeabilities started increasing from weeks 4 to 8 except for NRC in water. Then until week 22, the RC-1-NaOH sample showed the largest chargeability compared to other samples. Even though the relaxation time for the chargeability peak was not well resolved by the RTD, it was longer than 100 s and approximately 1000 s. The lack of resolution was caused by the lack of complex resistivity measurements at much lower frequencies ($f < 1.43$ mHz). The chargeability peak was wide with half-width extending from 10 to 1000 s.

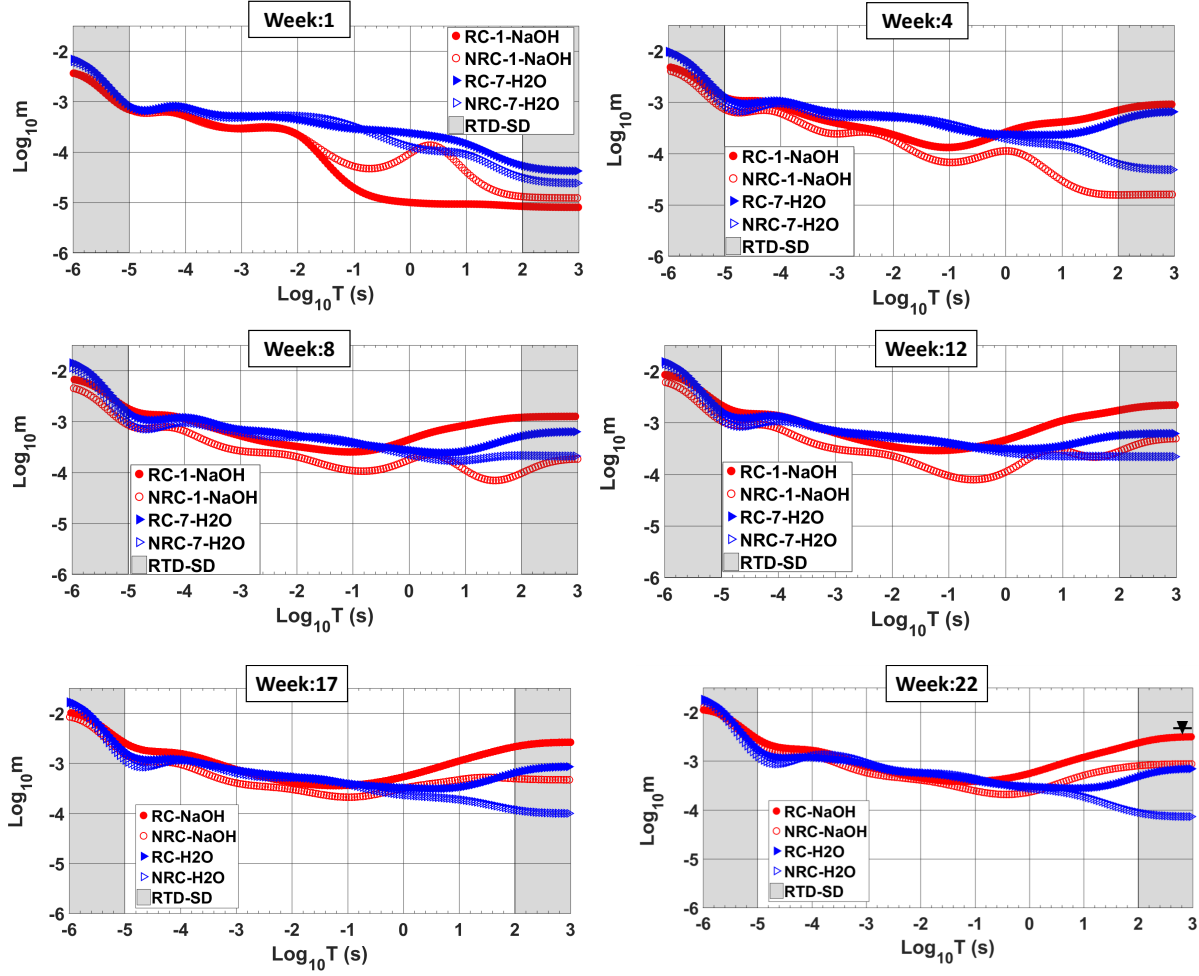


Figure 5.6 Relaxation time distribution (RTD) of concrete samples saturated with water (RC-7-H₂O and NRC-7-H₂O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) from SIP data in the frequency range [1.43 mHz-20 kHz]. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is estimated to 10^3 s (displayed by a black triangle).

In heterogeneous materials such as concrete, the phase lag response of small grains may be hidden by the Maxwell–Wagner polarization (Lesmes David P. and Frye Kevin M., 2001; Revil and Florsch, 2010) at high frequencies ($f > 100$ Hz) (Leroy et al., 2008). In order to avoid this dominant mechanism, we have computed the RTDs for the low frequency range (1.43 mHz-5.86 Hz) only (Figure 5.7) that could monitor the polarization changes resulting from the coarse aggregates (5-20 mm) used in concrete samples (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2014). For the low frequency range, the estimated RTDs showed better resolution than the ones extracted from the whole frequency range (see Figure 5.6).

As shown in Figure 5.7, the RC-1-NaOH sample displayed a chargeability peak from week 4 in the range of $\tau > 10$ s. The extracted RTD from RC-7-H₂O sample was relatively constant and remains smaller than the one extracted from RC-1-NaOH. From weeks 4 to 22, for the relaxation times $\tau > 10$ s, the RC-1-NaOH sample showed a fast-growing chargeability peak compared to that one produced from NRC-1-NaOH. The RTD of NRC-1-NaOH sample showed that chargeability started increasing only from weeks 17 to 22 (Figure 5.7). The NRC-7-H₂O sample did not show any evolution of RTD with time, and it remained smaller than the one saturated with the NaOH solution (Figure 5.7).

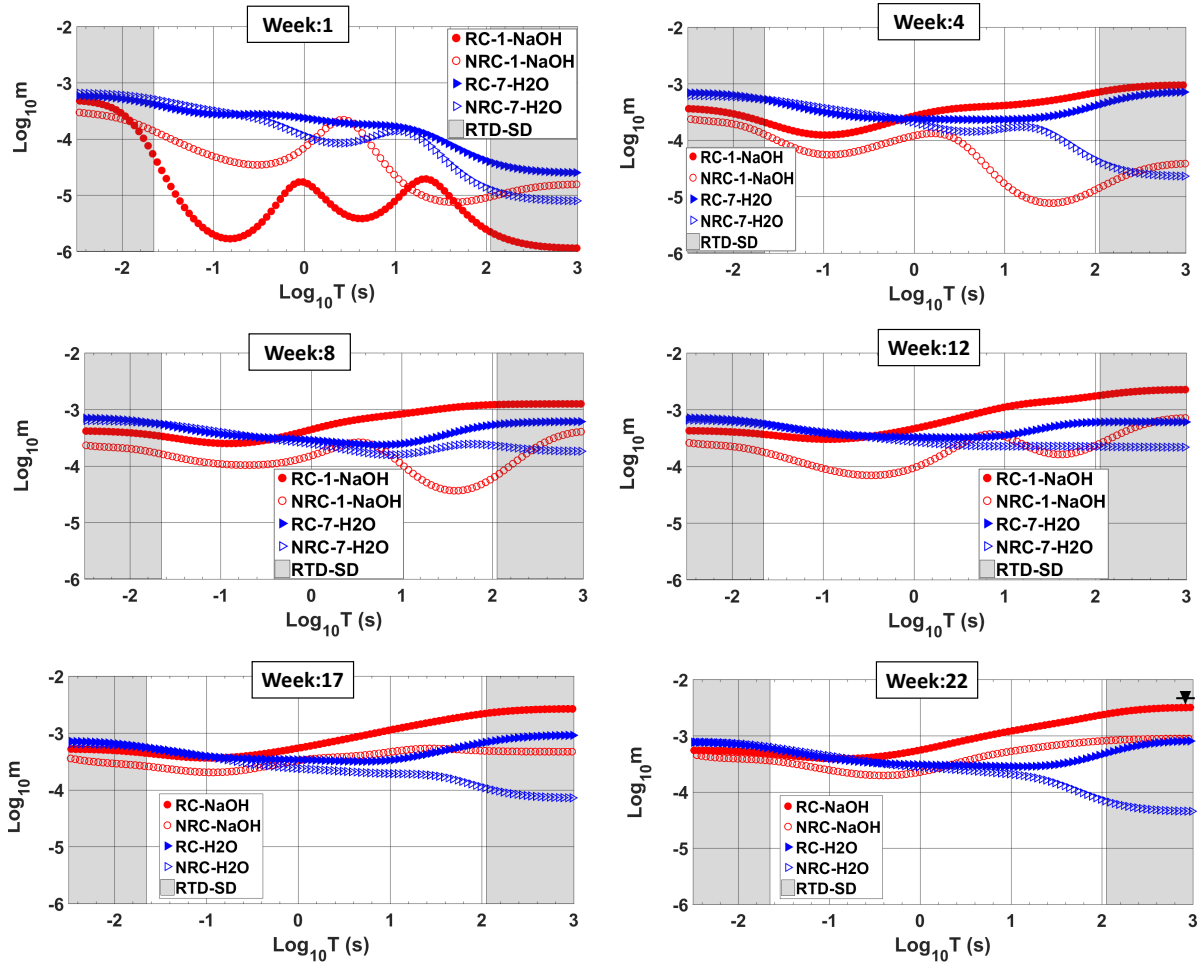


Figure 5.7 Relaxation time distribution (RTD) of concrete samples saturated with water (RC-7-H₂O and NRC-7-H₂O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) from SIP data in the frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz]. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is estimated to 10^3 s (displayed by a black triangle).

Integrating parameters

The characteristic integrating parameters computed from the recovered RTD are Σm and τ_{mean} (Nordsiek and Weller, 2008; Bérubé et al., 2017a). In our analysis, these parameters were calculated for different frequency ranges in order to characterize the polarization mechanisms taking place in both concrete mixtures (RC, NRC) with various compositions and saturating solutions.

As shown in Figure 5.8a, the SIP integrating parameters for the RC-NaOH samples increased (Σm : from 8 % to 15 % , τ_{mean} : from 0.004 s to 0.04 s) from weeks 4 to 22 over the full-frequency range [1 mHz-20 kHz]. The τ_{mean} for the RC-NaOH mixtures remained quite constant ($\tau_{mean}=0.04$ s) from weeks 10 to 22. The results also indicated a linear trend between Σm and τ_{mean} for NaOH-RC samples, whereas the DD parameters of RC-H₂O remained roughly constant in the same frequency range (Figure 5.8a). The NaOH-NRC mixtures showed a slight increase in Σm (from 7 to 11%) from weeks 17 to 22, while τ_{mean} remains approximately constant (0.001-0.004 s). The parameters Σm and τ_{mean} for NRC-H₂O samples remained constant and very similar to the same as the integrating parameters of RC-H₂O (Figure 5.8b).

Since in this case, the DD parameters Σm and τ_{mean} were calculated over the whole frequency range, they amalgamated various polarizations existing at different frequencies (aggregate, sand, cement paste, etc.). In order to better characterize the complex polarization, the full-frequency range was divided into three different frequency ranges [1.43 mHz - 5.86 Hz], [11 Hz - 94 Hz], and [189 Hz - 20 kHz] based on observation of the measured SIP responses.

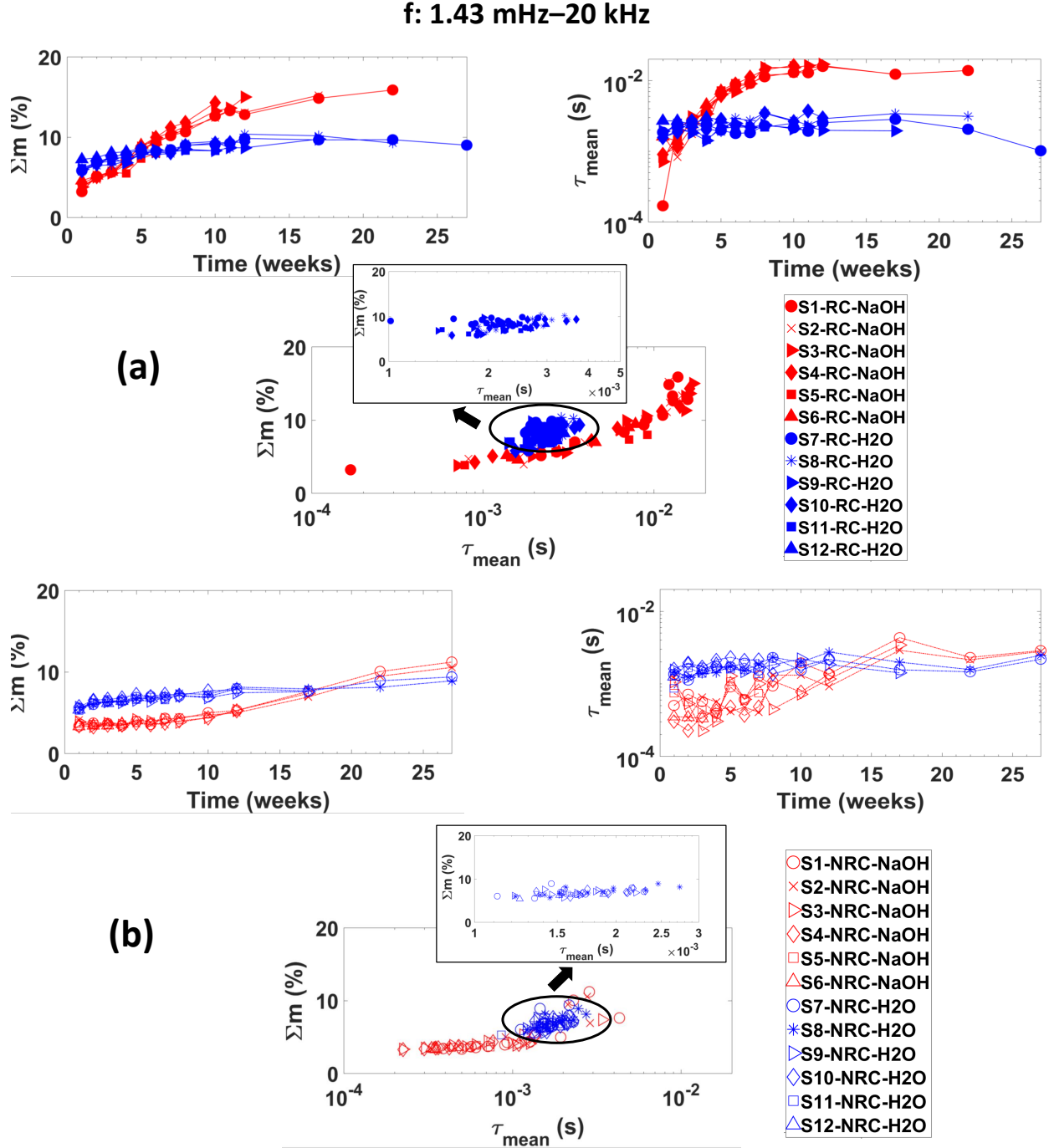


Figure 5.8 Integrating parameters of Debye decomposition over the full-frequency range (1.43 mHz–20 kHz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.

As shown in Figure 5.9 a,b for the frequency range 1.43 mHz–5.86 Hz, the τ_{mean} and Σm for

the concrete samples saturated with water (RC-H₂O and NRC-H₂O) remained quite similar to the ones extracted from the whole frequency range. The change in τ_{mean} of NaOH-RC samples was strongly related to the duration of the experiment (Figure 5.9a) and increased by approximately 2-8 s from weeks 1 to 12, and remained constant during the last three weeks. In this case, there was a strong correlation between Σm and τ_{mean} (Figure 5.9a). For the NRC-NaOH, the integrating parameter τ_{mean} showed a slight increasing trend by about 1 s (week 5) to 4 s (week 17) and Σm from 2 % (week 17) to 4 % (week 27) (Figure 5.9b).

Over the frequency range [11 Hz - 94 Hz], both mixtures (RC, NRC) showed approximately the same values and the same behaviours of τ_{mean} ($4.0 - 4.5 \times 10^{-3}$) and Σm (NaOH-saturated mixtures : from 0.5 to 1%, H₂O-saturated samples : from 1 to 1.5%) with time (see Figure 5.10). These results cannot be used to discriminate between both concrete samples.

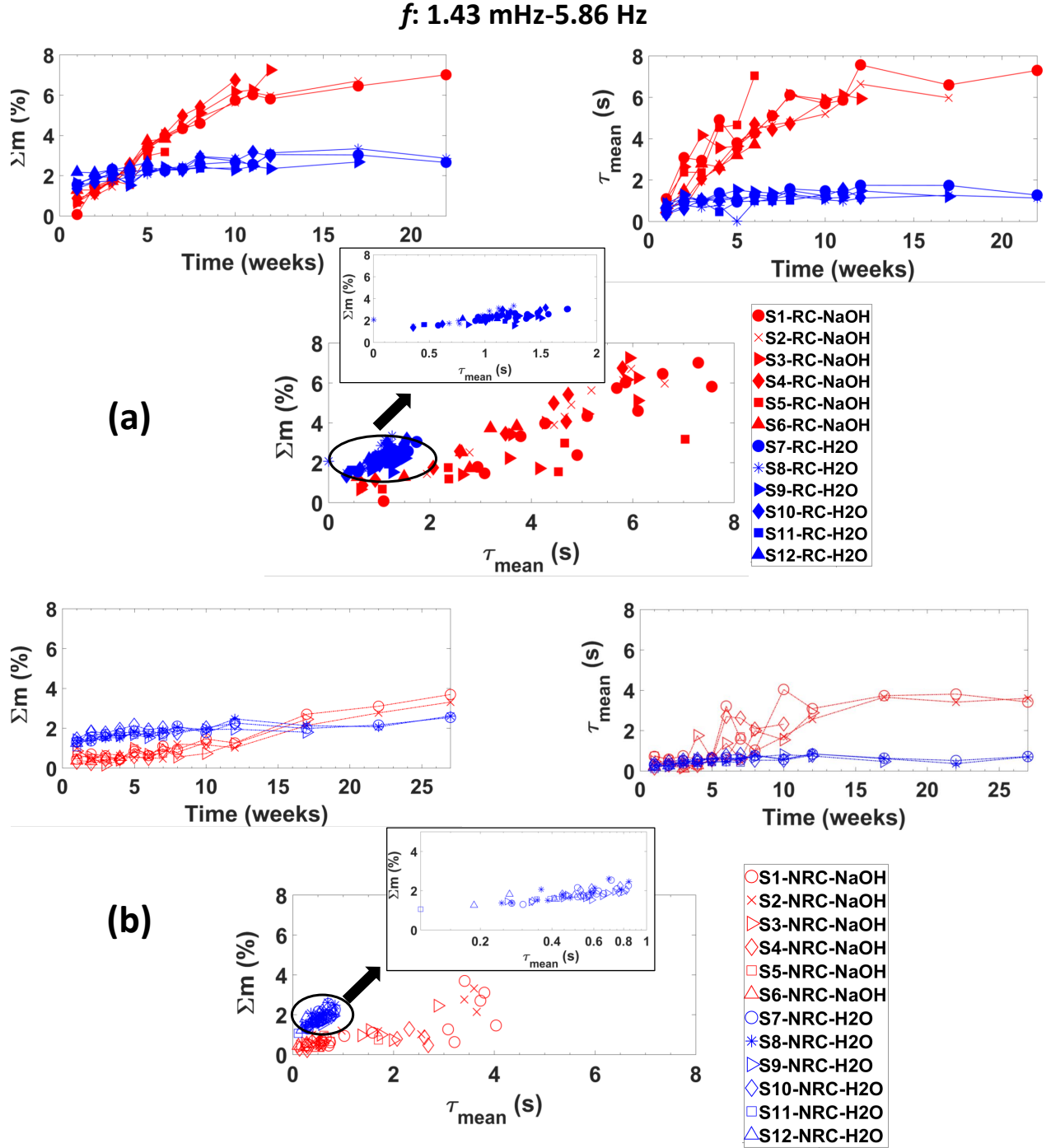


Figure 5.9 Integrating parameters of Debye decomposition at low frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz] for (a) the reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.

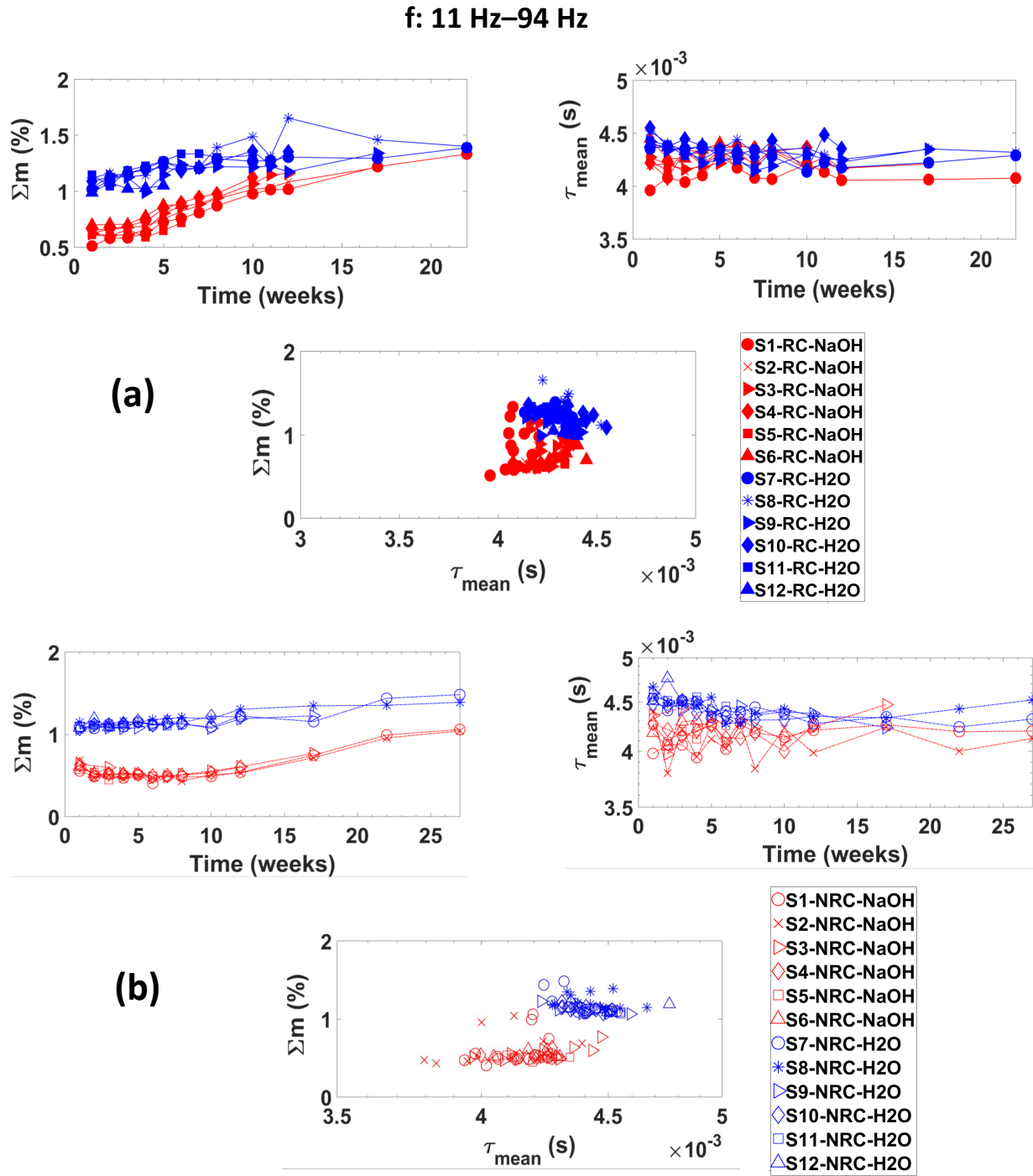


Figure 5.10 Integrating parameters of Debye decomposition at intermediate frequency range (11 Hz– 94 Hz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.

Figure 5.11 displays the DD integrating parameters calculated for the high frequency range

[189 Hz-20 kHz]. For both mixtures saturated with the NaOH solution, the behaviour of Σm was similar to the one observed for the very low frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz]. In this case, there was no evolution of DD parameters (Σm , τ_{mean}) in both concrete samples saturated with H₂O. For the RC-NaOH, the Σm increased from 4 % (week 4) to 9 % (week 22). For the NRC-NaOH, the Σm slightly increased from 5 % (week 17) to 7 % (week 27). As noted above in this case, the variation of Σm may be affected by the Maxwell–Wagner polarization and by the dielectric response at relatively high frequencies (Leroy et al., 2008; Revil, 2013; Revil et al., 2014). Also, there was no correlation between Σm and τ_{mean} for both mixtures (see Figure 5.11) due to their very low τ_{mean} values. As shown in Figures 5.10 and 5.11, for the median [11 Hz-94 Hz] and high frequency ranges [188 Hz-20 kHz], the results did not indicate any significant variation of the DD parameters with time. On these terms, the relation between τ_{mean} with Σm could not be well defined.

f: 189 Hz–20 kHz

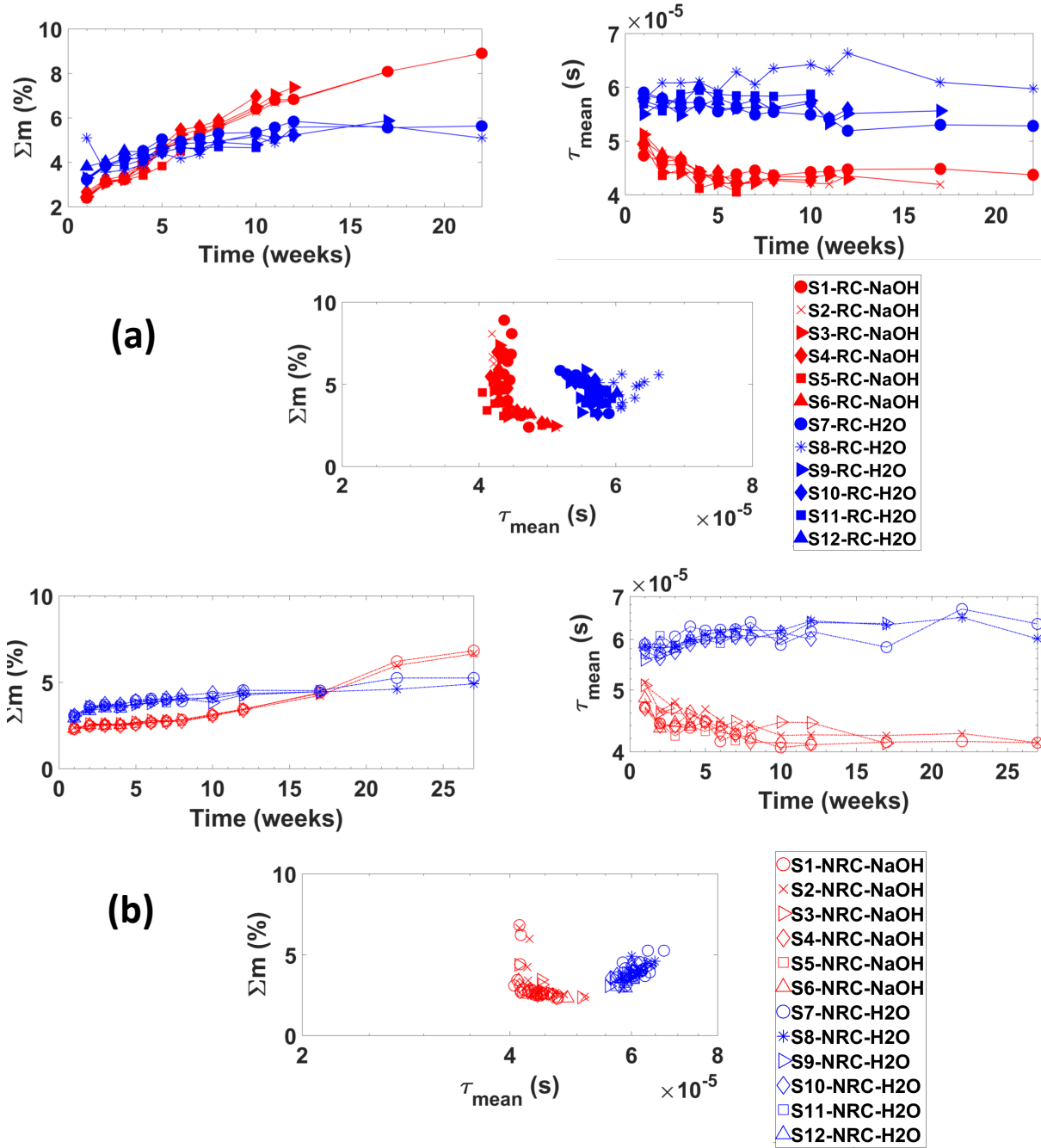


Figure 5.11 Integrating parameters of Debye decomposition at very high-frequency range (189 Hz–20 kHz) for (a) reactive and (b) non-reactive concrete samples saturated with water and the NaOH solution.

Figures 5.12a, b show the computed integrating parameters, total chargeability (Σ_m) and

DC bulk resistivity (ρ_0), over the whole frequency range [1.43 mHz-20 kHz] for both concrete mixtures saturated with two different solutions (NaOH, H₂O) for 22 weeks for RC samples and 27 weeks for NRC mixtures. The ρ_0 values for both mixtures saturated with the NaOH solution showed a similar increase with time (Figure 5.12a) somewhat smaller compared to the ones saturated with water. While the RC-NaOH samples showed a rapid increase in Σ_m from weeks 4 to 20, the NRC-NaOH mixtures displayed only a slight increase in Σ_m from weeks 17 to 27 (Figures 5.12b). Figure 5.12c shows the evolution of the normalized chargeability (M_n) with time. M_n is the total chargeability Σ_m divided by ρ_0 , and is equivalent to the imaginary conductivity (σ'') as demonstrated by Lesmes and Morgan (Lesmes David P. and Frye Kevin M., 2001), and Slater and Lesmes (Slater and Lesmes, 2002). The RC-NaOH mixtures displayed a rapid increase in M_n with time that remained quite constant from weeks 17 to 22. This was longer than the one resulting from non-reactive mixtures saturated with the NaOH solution (Figure 5.12c). While, the concrete samples (RC, NRC) saturated with water showed a higher resistivity overall than the NaOH-saturated mixtures (Figure 5.12 a), Σ_m remained approximately constant with time (Figure 5.12 c).

Based on the conductivity model presented by Slater and Lesmes (Slater and Lesmes, 2002) for unconsolidated samples characterized by small phase measurement ($1 < \varphi < 28$ mRad), there is a linear correlation between the imaginary part of the complex conductivity (σ'') and the normalized chargeability (M_n). M_n values are plotted versus the imaginary conductivity (σ'') in Figure 5.12d for the reactive and non-reactive samples in both solutions (RC-7-H₂O, NRC-7-H₂O, RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH). RC-NaOH samples showed a very strong linear dependence between theses electrical responses compared to the NaOH-NRC mixtures (Figure 5.12d). In our study, the linear relationship between M_n and σ'' was found for small phase lag (RC : 5-30 mrad) at low frequencies $f < 5.86$ Hz. According to the model introduced by Revil et al. (Revil and Florsch, 2010), σ'' is associated with the displacement of the counterions (due to reactivity of solid/ electrolyte interface) in the Stern layer giving rise to a electrochemical polarization when an electric field is applied. (Revil and Florsch, 2010). According to this model, the surface of the ASR-affected grain could develop a net surface charge in presence of the concrete pore solution. This was observed as a positive correlation between σ'' and M_n through the ASR development with time.

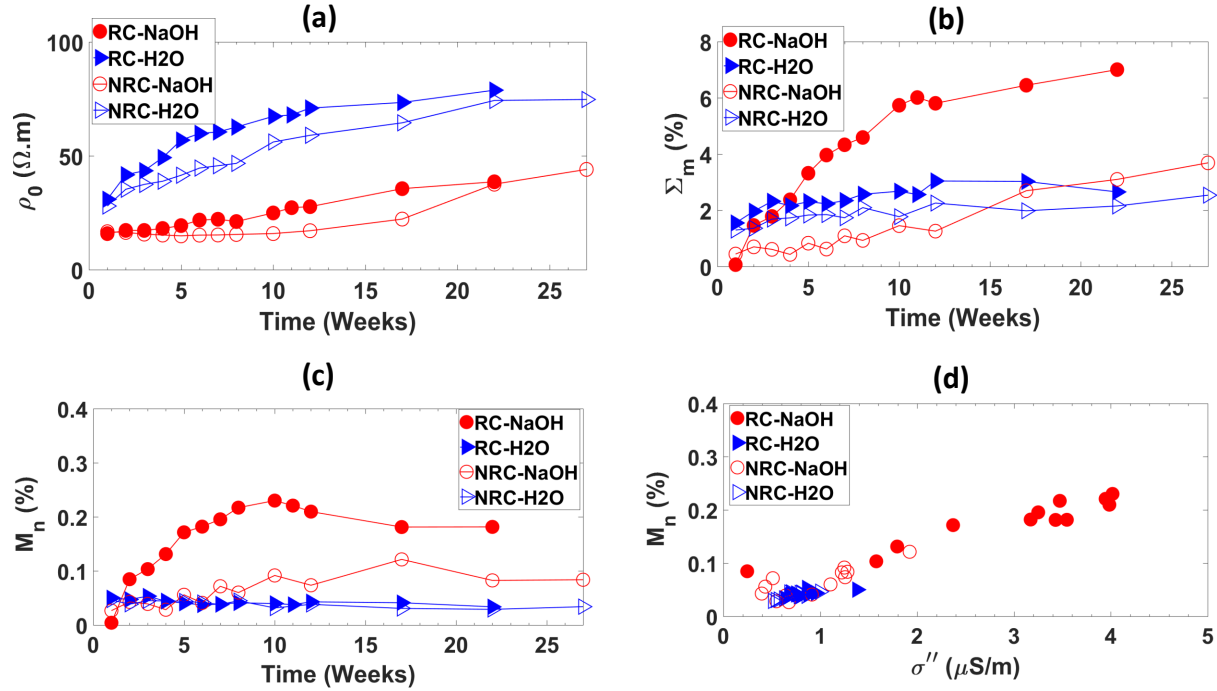


Figure 5.12 Correlation between DD integrating parameters of concrete samples saturated with water (RC-7-H₂O and NRC-7-H₂O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) at the low frequency range (1.43 mHz -5.86 Hz). (a) Variation of DC bulk resistivity (ρ_0) with time. (b) Variation of total chargeability (Σ_m) with time. (c) Variation of normalized chargeability (M_n) with time. (d) Normalized chargeability (M_n) versus imaginary conductivity (σ'').

5.5 Discussion

Until now, we have assumed that the RC-NaOH samples were affected by ASR. Monitoring of expansion with time during the experiment and petrographic examination performed on pieces of samples after compressive strength tests have clearly demonstrated that this was effectively the case. Expansion for the RC-NaOH samples reached 0.5% over 22 weeks compared to <0.1% for RC-H₂O samples. The NRC-NaOH mixtures displayed an increase about 0.037 % from weeks 17 to 22, and NRC-H₂O mixtures showed a similar expansion as for the RC-H₂O samples. Petrographic examination using Damage Rating Index (DRI) confirmed the development of ASR gel around the affected aggregates for both concrete samples saturated with NaOH solution; no gel was observed for the other samples saturated with H₂O. These analyses together with the SIP results and the other complementary measurements performed on the samples will be the topic of another upcoming paper.

According to previous work (Prezzi et al., 1997; Chatterji, 2005; Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013; Comi et al., 2014), the electrical properties of the concrete microstructure can be affected by the EDL formed at the solid-solution interface during the development of ASR gel or by the cement hydration products (C-S-H) or both. Based on the research pioneered by Revil et al. (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2014) and our results, the evolution of the DD integrating parameters such as τ_{mean} and Σ_m in the very low frequency range ($f < 5.86$ Hz) may be associated with an increase in the volume of counterions at the grain surfaces affected by ASR, and the plugging of pores during the microstructural evolution due to the ASR gel production of the affected concrete structure. In other words, according to Equation 5.3, the specific surface conductivity Σ_s associated with the Stern layer increases, and so does σ'' , as ASR develops at the surface of reactive aggregate grains.

From the resulting RTDs (Figures 5.6 and 5.7) and the DD integrating parameters versus time, we propose a simple conceptual electrochemical model for the ASR-affected concrete samples reconciling all observed results. We assume the concrete mixture to consist of three main populations of mineral grains, from finer to coarser, cement, sand and aggregates, each with their own grain size distributions. When saturated with water or an aqueous solution, and when an electrical current is applied, electrochemical polarization generates a RTD for each grain population and the overall RTD for the concrete sample is simply the sum of the three individual RTDs. When ASR develops with time, it increases chargeabilities only for the RTD related to aggregates; the other grain populations do not evolve with time since there are no chemical reactions (except for hydration). The overall RTD will thus show an increase mainly in the range of relaxation times associated with the grain sizes of aggregates.

Figure 5.13 shows the proposed conceptual electrochemical model of RTD for an ASR-affected concrete sample (RC-1-NaOH) according to three components : cement, sand and aggregates. Each RTD has a range in relaxation times derived from Equation 5.4 introduced by Revil et al. (Revil and Florsch, 2010), assuming a diffusion coefficient of sodium ($D = 1.32 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$) (Revil et al., 2014). Each component has its RTD response : For aggregates of diameter between 5 and 20 mm used in our mixtures (RC, NRC), the relaxation times could be estimated between $2.36 \times 10^3 \text{ s}$ ($D_{30\%} = 5 \text{ mm}$) and $37 \times 10^3 \text{ s}$ ($D_{70\%} = 20 \text{ mm}$). Relaxation times longer than 1000 s could not be estimated because of the lack of SIP measurements at much lower frequencies ($f < 1.43 \text{ mHz}$). For sand particles, the relaxation times were estimated to lie between 0.6 s (0.08 mm) and $2.36 \times 10^3 \text{ s}$ (5 mm). Cement with particle size ($D_{95} = 67 \mu\text{m}$) with very short relaxation times ($\tau < 10^{-7}$) could not be observed in this work due to a lack of SIP measurements at much higher frequencies ($f > 20 \text{ kHz}$). This had no impact since cement immediately reacts with water to develop hydrated products that will turn into a cement matrix by hydration. Therefore the cement matrix might showed chargeability

caused by membrane or electrochemical polarization, or both, at short and intermediate relaxation times in the overall RTD. It should be noted that interval for $10^{-6} \text{ s} < \tau < 10^{-2} \text{ s}$ in Figure 5.13 was assumed to be related to the chargeability response of cement hydration process in the concrete structure (Cabeza et al., 2002), but more research is needed to confirm this observation based on the complex electrical behavior of hydrated cement paste.

Based on our conceptual electrochemical model presented in Figure 5.13, an increase in chargeability peak was observed at relatively long relaxation times $\tau > 100 \text{ s}$ that progressed toward to the coarse-grained area through the ASR development over time. This observation could be associated with the polarization of the Stern layer that appeared due to increasing the charge density at the aggregates surface affected by ASR. According to Equation 5.8, the mean relaxation time is the logarithmic average of all relaxation times value weighted by their corresponding chargeability. On these terms, the evolution of τ was associated with increase in chargeabilities in the relaxation time range of aggregates over time.

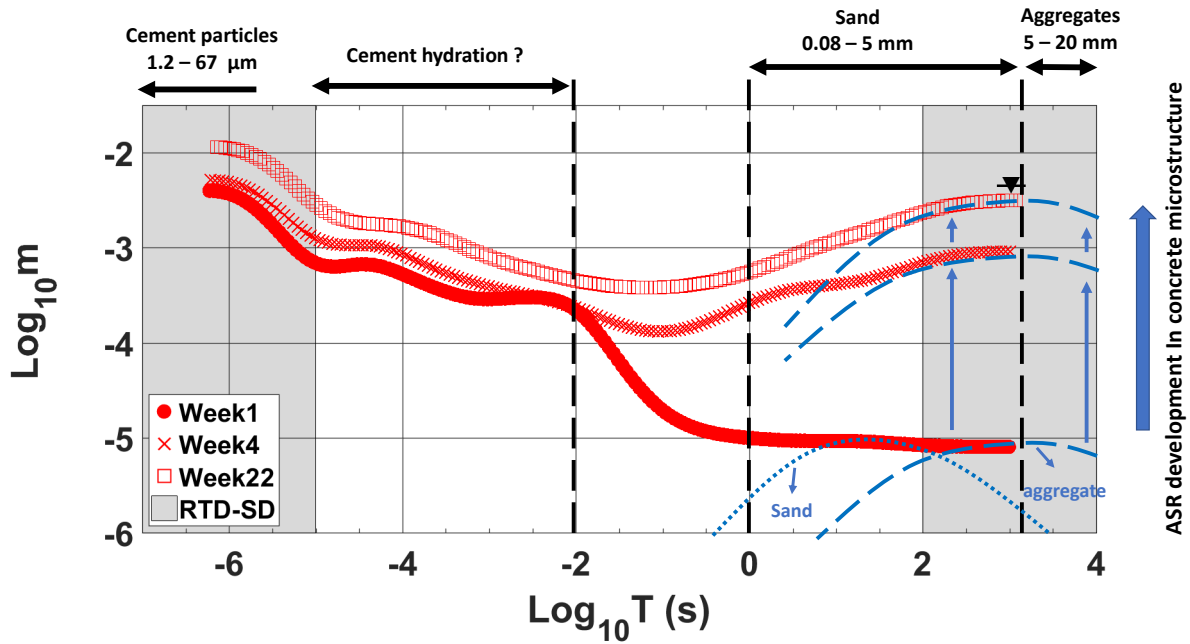


Figure 5.13 Evolution of RTD for RC-1-NaOH with time for $T(\text{s})$ ranging from 10^{-6} to 10^4 s . The black dashed vertical lines correspond to the approximate limits of relaxation times computed from particle size distribution for aggregates, sand, and hydrated cement paste. The blue dashed line corresponds to the increase in chargeability (m) with time of the granular media (aggregate) affected by ASR. The shaded zones at each end of the RTD indicate ranges with poor resolution in the estimation of chargeability. τ_{peak} is displayed by a black triangle.

An important finding of our laboratory experiments was that the SIP method was able to detect a significant difference between the phase lag of non-affected and ASR-affected concrete samples specially over the low frequency range [1.43 mHz- 5.86 Hz] that seems to be related to the aggregate size. The Σ_m and the τ_{mean} have been considered as the DD parameters to characterize the ASR specially over the low frequency range [1.43 mHz-5.86 Hz]. The results also confirmed a strong linear correlation between τ_{mean} and Σ_m for RC-NaOH mixtures. In this case, the SIP measurement especially showed a significant sensitivity to distinguish the electrical response (phase lag) and DD parameters (Σ_m , τ_{mean}) between two different mixtures (RC, NRC) saturated with the NaOH solution.

Unlike the electrical responses discussed above, the electrical bulk resistivity (ρ_0) had very little to do with the development of ASR in affected concrete samples. In this study, the behaviour of ρ_0 could significantly correspond to the changes in the electrical conductivity of the solution (water, NaOH). There was a similar increasing trend in ρ_0 with time for both mixtures (RC, NRC) saturated with the same solution (NaOH, water). This increasing trend could be due to the change in other parameters i.e. porosity, tortuosity, etc. in the concrete microstructure caused by cement hydration (Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013; Dong et al., 2014). This is particularly displayed in Figure 5.5 showing the same evolution in bulk resistivity between reactive and non-reactive concrete samples in water. The period, 22 weeks, was too short for ASR to take place in the RC samples saturated with water. Therefore, the increase in resistivity for a constant solution conductivity was totally caused by hydration of the cement and cure of concrete through the development of matrix skeleton.

Based on the simple Archie's law ($\rho_0 = F \times \rho_w$) for completely saturated samples, any variation of the normalized resistivity ρ_0 by the resistivity of the solution ρ_w over time indicates changes in the formation factor (F) due to evolution of porosity (φ), tortuosity (a), and the cementation exponent (m) of the sample ($F = \rho_0 / \rho_w = a \times \varphi^{-m}$). In this regard, one way of reducing the sensitivity of bulk resistivity to the variation in the resistivity of solution (ρ_w) would be to normalize the resistivity of concrete samples ρ_0 by the resistivity of the container solution ($\rho_{(H_2O)}$, $\rho_{(NaOH)}$). As shown in Figure 6.13, for both concrete mixtures (RC, NRC) saturated with the NaOH solution, the variation in normalized resistivity (ρ_0 / ρ_w) was similar, and showed a slight increase with time from 300 to 500. On the other side, both mixtures saturated with water (H₂O) displayed a smaller normalized resistivity compared to the NaOH-saturated samples; the F values (ρ_0 / ρ_w) increased from 10 to 60 during the first 12 weeks and then they remained constant from weeks 17 to 22 (Figures 6.13).

As the concrete samples were made with very similar mixtures and displaying approximately the same porosity (0.10 to 0.12), the formation factors F should display very similar values.

In fact, the samples saturated with a solution 1 N NaOH showed an estimate of F 5 to 6 times greater than the samples saturated with tap water. Assuming a porosity between 0.10 and 0.12 and a cementation exponent m ranging between 1.5 and 2.0, values of F 20 to 80 for F were computed using Archie's law for saturated samples. This is the range for F that we observed for the RC and NRC samples saturated with tap water. Therefore in order to explain the high F values calculated by resistivity normalization for the RC and NRC samples saturated in NaOH solution, we must either invoke ; 1) a rapid reduction in porosity right at the inception of the experiment by a factor of 2 to 3, or 2) a resistivity of pore electrolyte that is 5 to 6 times higher than the resistivity of the container solution (0,3 $\Omega\cdot m$ instead of 0,06 $\Omega\cdot m$). If an average reduction of porosity (NRC samples) from 0.12 to 0.10 (16% decrease) is noticed from weeks 4 to 22, this is by far not enough to account for the sudden change in F at week 1. Therefore, the most likely explanation is that the solution within the samples (NaOH solution) has a lower ionic concentration than the solution in the container. The reason for the difference in concentration has yet to be elucidated. However this observation has no impact on the results so far displayed for the samples saturated with the NaOH solution. It is the variation of the bulk resistivity with time that is important and not the absolute value ; it shows that it increases slowly with time as the hydration reaction progresses. Even if the volume of solution is (possibly) lower within the sample, the NaOH concentration is enough to trigger an ASR with the reactive aggregates and to generate a measurable phase lag response of 30 mrad at low frequencies. As shown by Vinegar and Waxman (Vinegar and Waxman, 1984), the conductivity of the electrolyte has negligible impact on the imaginary conductivity σ'' .

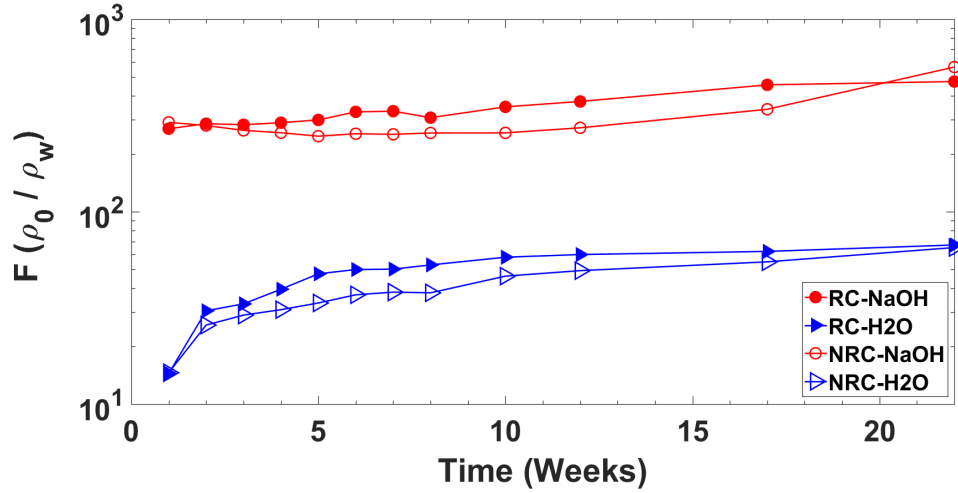


Figure 5.14 Monitoring of the normalized bulk resistivity (ρ_0/ρ_w) for saturated concrete samples (RC and NRC) over 22 weeks.

The laboratory conditions which we considered for the ASR development over a period of 22 weeks are very similar to the accelerated standard ASTM1260 standard, but at a lower temperature 60°C compared to 80°C for ASTM1260. Under these conditions, at low frequency range [1 mHz-5.86 Hz], laboratory results showed a phase lag change of 30 mrad for accelerated reactive samples (RC-NaOH) compared to that of 5 mrad for non-accelerated reactive ones (RC-H2O). The accelerated non-reactive mixtures (NRC-NaOH) showed a phase change of 5-10 mrad compared to its invariable ratio for non accelerated NRC-H2O in the same frequency range.

As the results shown in our work, there is a direct relationship between M_n and σ'' . According to the model introduced by Revil et al. (Revil and Florsch, 2010), σ'' is dependent on the specific surface area (S_{por}) and the surface conductivity of the Stern layer (Σ^s) :

$$\sigma'' = \frac{4\Sigma^s S_{por}}{a} \quad (5.9)$$

where a is a constant that depends on the packing of the grains.

Based on the work presented by Prezzi et al. (Prezzi et al., 1997), the structure of amorphous silica shows a high specific surface area which increases the gel reactivity with aqueous solutions. Given the results of our study, the evolution of the specific surface area can increase the

surface conductivity of the Stern layer (cation exchange capacity) formed at grain-electrolyte interfaces during the ASR development. Therefore, the variation in both parameter (Σ^s , S_{por}) can affect the evolution of σ'' in concrete microstructure affected by ASR.

The promising results obtained from our application of SIP to accelerated ASR in concrete did not lead yet to a method applicable to existing concrete structures. There is a long route of further testing to be undertaken. First, the conceptual RTD model should be challenged by using different grain size distributions of reactive aggregates and by observing if chargeabilities increase with time for relaxation times associated with particle sizes. Sand in the concrete mixture could also be reactive and a combination of sand reactive/non-reactive with aggregates reactive/non-reactive could be tested to observe resulting RTDs. A variational parametric study should be undertaken to measure the impact of each parameter on the SIP response and derived RTD. The main parameters are temperature, pore solution, moisture, grain size range, and different concrete mixtures. Additional tests are required to estimate specific grain surface area, cation exchange capacity, concentration of gel products (ASR, C-S-H) and grain size distributions. A characterization of the porosity (pore size distribution) with time within the concrete sample would also be highly recommended to evaluate the development of the matrix skeleton through the chemical reaction (ASR, cement hydration). The SIP measurements have shown that phase changes were detected on reactive concrete mixtures in accelerated conditions within the first 4 to 10 weeks. In the other hand, reactive concrete mixtures saturated with tap water did not show any evidence of phase change attributable to the ASR for 22 weeks. Here the factor of acceleration is unknown : after how many weeks a concrete structure suffering from ASR will be diagnosed at an early stage with a phase change in the complex resistivity response? A corollary to that question would be : if we measure a phase change in the complex resistivity response of a concrete structure does that mean that ASR is developing within the concrete structure? Therefore, a factor of acceleration or a time scaling factor should be estimated between accelerated conditions such as the ones used in this experiment and more natural conditions of reactive concrete submitted to variable saturation and temperature.

5.6 Conclusion

Our results suggest that the SIP measurements have the potential to be an effective non-destructive method to characterize and to discriminate ASR-affected from non-affected concrete structures based on their electrical responses. From the SIP data the two main parameters, magnitude or resistivity and phase lag versus frequency yielded different insights on the reactions taking place in concrete. The differences translated in the two groups of DD-derived

parameters : ρ_0 and chargeability versus relaxation times (or RTD).

While ρ_0 was strongly dependent on fluid chemistry, the electrical resistivity of both mixtures (RC, NRC) saturated with the same solution (NaOH or water) showed a similar increasing trend with time. The increase in ρ_0 may be correlated with the change in matrix texture during the production of ASR gel and cement hydration (Loche et al., 2005; Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013). According to our results, ρ_0 could not be a significant parameter for discriminating ASR-affected from non-affected concretes.

From the extracted RTDs, the following conclusions can be drawn :

1. Measurements at low frequencies [1.43 mHz-5.86 Hz] showed the evolution of SIP responses such as phase lag, Σ_m , τ_{mean} over time for the affected concrete samples by ASR compared to the non-affected mixtures. The linear relationship was observed between Σ_m , and τ_{mean} for the RC-NaOH mixtures characterized by small phase measurement (RC : 5-30 mrad). In this regard, the evolution of M_n displayed a strong dependence on σ'' through ASR development that could be associated with the polarization of the Stern layer due to reactivity of solid/ electrolyte interface (surface charge density).
2. Measurements at median [11 Hz-94 Hz] and high frequency ranges [188 Hz-20 kHz] did not show any significant correlation between Σ_m , and τ_{mean} due to their very low τ_{mean} . It should be noted that at high frequencies ($f > 100$ Hz), an increase in phase lag of accelerated mixtures (RC-NaOH, NRC-NaOH) was observed over time, that could be resulted from the increase in the ratio $\omega\varepsilon/\sigma$ estimating the dielectric (imaginary) contribution with regards to the reel (galvanic) electrical resistivity of sample [41, 54]. As before mentioned in this paper, the effect of electrochemical polarization of small size grains can be hidden by the dielectric permittivity contribution or/and by Maxwell-Wagner polarization for high frequencies ($f > 100$ Hz), these later contributions affecting the estimation of Σ_m , and τ_{mean} .

The RTD extracted from affected concrete samples showed an increase of chargeability from weeks 4 to 22 for RC-NaOH. We proposed a conceptual electrochemical model for the RTDs extracted from our samples. It was the superimposition of chargeabilities due to three main groups of mineral grains : between 10^{-6} s and 10^{-2} s, it was attributed to the cement matrix ; between 10^{-1} s and 10^1 s, it was the contribution of the sand particles and finally, for $\tau > 10^2$ s it corresponded to the polarization of the aggregates. The chargeabilities for the later increased or not with time depending if they were reactive or not. Therefore, ASR was detected by increase in the chargeability for those long relaxation times or, alternatively, by increase in total chargeability and mean relaxation time or by increase in phase lag at low frequencies.

Finally, according to the results obtained from this work, the laboratory SIP measurement and its processing techniques (Debye decomposition model) can be considered as a promising non-destructive methodology for detection and time-lapse monitoring of ASR development.

Acknowledgement

The authors would like to thank Etienne Bélanger and Louis-Pierre Barrette from Ecole Polytechnique, and Danick Charbonneau and Ghyslain Luc from Université de Sherbrooke (Québec, Canada). The project was supported by grants from the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) to Pr. Chouteau, from the Centre de Recherche sur les Infrastructures en Béton (CRIB), and the international internships of the Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies (FRQNT) to Pr. Rivard.

CHAPITRE 6 ARTICLE 3 : LABORATORY CHARACTERIZATION OF CONCRETE AFFECTED BY ACCELERATED ALKALI-SILICA REACTION : VALIDATION OF COMPLEX ELECTRICAL PROPERTIES

Cement and Concrete Research

Submitted May 10, 2019

Authors : Yasaman Khajehnouri ¹, Michel Chouteau ¹, Patrice Rivard², Charles L. Bérubé ¹

¹Polytechnique Montréal, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines,
Montréal, QC, Canada

²Department of Civil Engineering, Université de Sherbrooke, QC, Canada

Abstract

Alkali-silica reaction (ASR) is one of the most damaging problems with chemical alteration causing mechanical and physical changes in the concrete properties. Therefore, a method aiming at detecting ASR before external signs become visible is needed. This paper focuses on the study of the significant relationships between the electro-chemical-physico-mechanical properties and ASR development in concrete over time. Non-destructive methods (spectral induced polarization, ultrasonic pulse velocity, expansion, and mass variation) and destructive testing (compressive strength, modulus of elasticity, petrographic examination) were used to monitor concrete mixtures (reactive and reference) submitted to accelerate test conditions. A significant evolution of SIP responses (phase lag, total chargeability, mean relaxation time) was found in the concrete samples affected by ASR over the low frequency range. This observation was confirmed by other measurements specially expansion, UPV, modulus of elasticity, and petrographic analysis. Finally, this paper suggests SIP method as another non-destructive technique to monitor ASR development.

6.1 Introduction

The alkali-silica reaction (ASR) produces hydrophilic gel which absorbs water and subsequently induces expansion pressure in concrete microstructure. Expansion causes microcracking of the concrete affected by ASR which reduces its durability (Sánchez et al., 2007). In recent years, many researches have been focused on the study of concrete expansion associated with production of silica-rich gel (Rodrigues et al., 1999; Bulteel et al., 2002; Ichikawa and

Miura, 2007; Saouma et al., 2015a). Other authors have characterized expansion of concrete using charge density measurement of amorphous silica related to the electrical double layer model (EDL) (Rodrigues et al., 1999; Comi et al., 2014). In order to diagnose the ASR reaction, numerous studies were carried out on visualization of the ASR products using the fluorescence method (Natesaiyer and Hover, 1989), petrographic examinations (Turanli et al., 2003; Haha et al., 2007), and mineralogical observations with tools such as scanning electron microscope (SEM) with energy dispersive spectrometry (EDS) and energy dispersive X-ray analysis (EDX) of silica gel (Grattan-Bellew and Chan, 2013; Beyene et al., 2013). However, these approaches were limited due to their high cost and lack of representativeness of cores that sample a very small fraction of the concrete structure (Boukari et al., 2010). Characterization using ultrasonic pulse velocity (UPV) measurement can be very sensitive to microcracking of the concrete if expansion is well developed Swamy and Al-Asali (1988); Ahmed et al. (2003); Fournier and Bérubé (2000); Fujii et al. (1987). Ahmed et al. (Ahmed et al., 2003) observed a rapid decrease of 0.24 % in UPV for a around 0.1% in concrete affected by ASR. In this case the more severe is the ASR expansion, lower is the UPV. However, Saint-Pierre et al. (Saint-Pierre et al., 2007) observed that the pulse velocities did not show evolution with ASR development, and remained constant after an expansion higher than 0.09%. According to Fujii et al. (Fujii et al., 1987) and Multon et al. (Multon et al., 2005), compressive strength of concrete structure could be affected by various degrees of alkali-silica reaction. Nevertheless, this property becomes more or less affected due to specific parameters such as confinement factors, exposure time, and temperature (Liu et al., 2014). Compressive strength is not considered as a good indicator of the ASR damage in affected concrete with low expansion levels (Fournier et al., 2010). The modulus of elasticity (Young's modulus) is a representative indicator of ASR reaction; it significantly decreases during the first appearance of cracks (Chana and Thompson, 1992; Mohammed et al., 2004). None of the techniques presently available are able to detect changes in microstructure caused by ASR at an early stage, when no cracks are developed and very little to none ASR gel is produced.

Based on numerous studies (Song, 2000; Loche et al., 2005; Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013; Jolivet et al., 2007; Jasniok, 2013; Castela et al., 2014; Dong et al., 2014), spectral induced polarization (SIP) was assessed as a promising non-destructive method to monitor evolution of concrete microstructure (cracking, pore connectivity) through development of the chemical reactions (hydration, corrosion, carbonation, etc.). The real part of the measured complex resistivity (bulk resistivity) is related to electrolytic conduction, porosity, tortuosity. The imaginary part (phase lag) is associated with surface conductivity (mobility, distribution of the charge carriers) and electrochemical polarization (electrical double layer) produced at the aggregate-cement interface when an electric field is applied. (Comi et al., 2014; Chatterji,

2005; Cruz et al., 2013; Sanchez et al., 2008; Vinegar and Waxman, 1984; Revil, 1999; Revil and Florsch, 2010; Revil and Skold, 2011; Revil et al., 2012; Revil, 2013).

In this regard, we carry out a quantitative analysis of the ancillary data to assess the reactions for the evolution of the concrete microstructure and observe possible correlations between the complex resistivity responses from SIP and other measured physico-mechanical properties. SIP data was collected simultaneously with other non-destructive methods (expansion, mass variation, ultrasonic pulse velocity) for concrete mixtures (reactive, RC; reference, NRC) until their programmed destruction during the final mechanical testing (compressive strength, modulus of elasticity). After destruction, density and porosity were measured on the remaining pieces, which were also used for SEM/EDS examinations. It should be noted that the damage rating index method (DRI) was carried out on cylinders which were used for expansion measurement.

In this paper, we first introduce an overview of the experimental set-up including the materials and laboratory test procedures. Then, we present the experimental results for the non-destructive techniques, and the destructive testing, the mineralogical characterization (SEM, EDS), the petrographic examination, and the porosity and the density analysis of concrete samples. We also introduced the chemical analysis of the solutions in the containers holding the concrete samples. Then we present the relationship observed between the complex electrical responses (relaxation time, total chargeability) and the physical properties (expansion) of concrete samples. Finally, we discuss the data resulted from all these methods to validate the sensibility of SIP for monitoring the ASR development, which could be associated with other changes (chemical, mineralogical, petrographic, physical-mechanical properties) in concrete structure.

6.2 Material

The tested samples consisted of twelve reactive concrete (RC) and twelve reference concrete (mentioned with symbol NRC) cylinders (76 mm diam. \times 190 mm length). The composition of concrete mixtures is presented in Table 6.1. The total alkali content $\text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}$ of both mixtures was boosted to 4 kg/m³ (0.95% of cement mass) to accelerate the reaction rate. The reactive concrete mixture was made with coarse aggregates from Placitas (New Mexico, USA). The main reactive minerals are chert, chalcedony, and quartz. The aggregates used for reference mixture was collected from Saint-Dominique quarry located in Saint-Hyacinthe (Quebec, Canada); they mainly consist of limestone and dolomite. All samples contained aggregates 70% with sizes 10-20 mm and 30 % with sizes 5-14 mm. The sand, from the Saint-François quarry (Quebec, Canada), consists mainly of quartz with particle size ranging

from 0.08 mm to 5 mm.

Tableau 6.1 Concrete mixture. W/C : water–cement ratio.

Mixtures	Reactive	Non-Reactive
Cement (kg/m^3)	420	420
Sand (kg/m^3)	887	887
Coarse aggregates (kg/m^3)	965	850
Water (kg/m^3)	210	210
W/C	0.5	0.5
$\text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}$ (kg/m^3)	4	4

6.3 Methods

Figure 6.1 display the sequence of all the non-destructive and destructive measurements performed on the concrete cylindrical samples (RC, NRC). Each concrete sample was measured the very same day with SIP and other non-destructive methods. This process was repeated every week for both mixtures (RC, NRC) until their destructive testings.

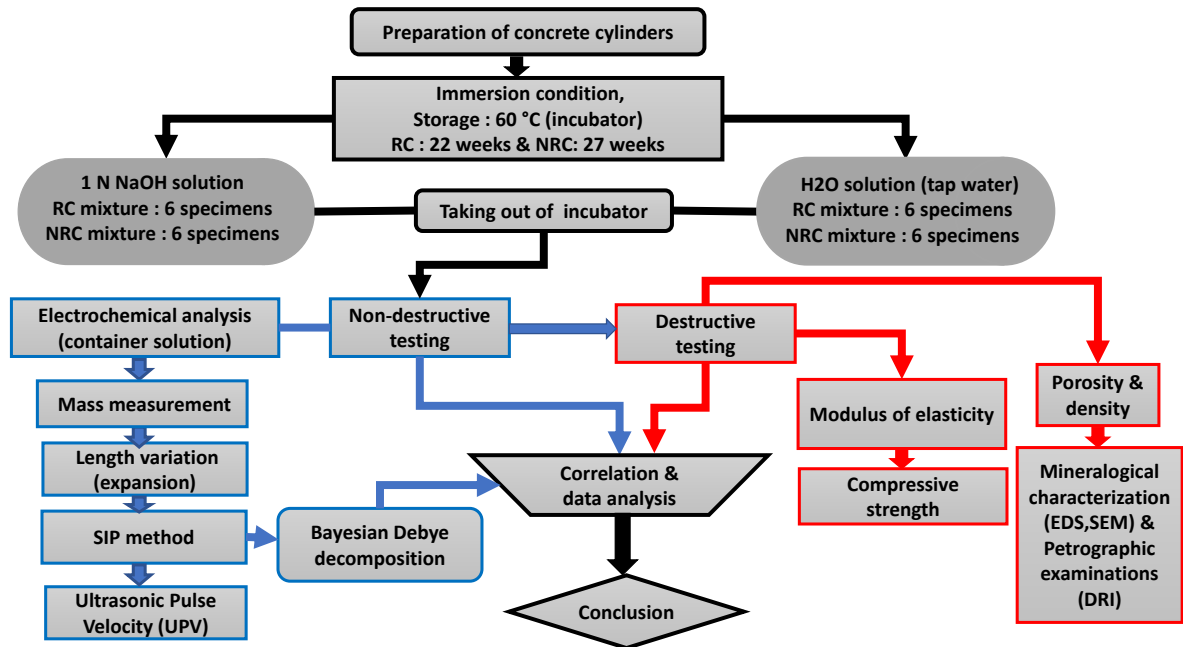


Figure 6.1 Methodology for testing the concrete samples and analyzing the collected data.

6.3.1 Non-destructive testing

The samples were maintained in a saturation condition for ASR development at 60°C; twelve samples (6 RC and 6 NRC) were immersed in a 1 N NaOH solution and the twelve others were immersed in tap water (H₂O). After immersion in the solution for reaching full saturation, the sample containers were taken out of the oven. When the concrete temperature reached the ambient temperature of the laboratory ($\sim 24^{\circ}\text{C}$ after 24 h), the complex electrical resistivity of the concrete samples was measured over the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz]. This process was repeated every week (for RC : from weeks 1 to 22 ; for NRC : from weeks 1 to 27). The measurement protocol allowed monitoring the sample responses using our laboratory experimental set-up (Khajehnouri et al., 2019) based on the SIP Fuchs III system (Radic Research, Germany). The samples were covered with a latex membrane to maintain their complete saturation rate and keep them from drying during measurement time (for further details, see (Khajehnouri et al., 2019)).

Expansion was measured according to the CSA 209 A23.2-14A Canadian standard procedure. Lengths of the samples were taken between stainless steel studs fixed at both ends of the samples and recorded using a digital caliper with the accuracy of 0.01 mm. The studs were also used for transmitting current in SIP measurements (Khajehnouri et al., 2019).

The P-wave velocity was measured using the UPV method (ASTM C597-02) to monitor variations in the microstructure and concrete damage (cracks, ASR gel, etc.). The device used consisted in a UPV Pulser Module, an Olson Freedom Data PC with acquisition system and two 54 kHz central-frequency transducers that allow measuring the time of flight from the transmitter to the receiver between the steel studs at both ends of the sample. UPV, expansion, and mass of concrete samples were calculated from the difference between the first value measured at week 1 and the value measured each week of the monitoring period to the nearest 0.01 % ($\frac{\text{measured value} - \text{initial value}}{\text{initial value}} \cdot 100\%$). The weekly average value for each group of samples (RC-NaOH, RC-H₂O, NRC-NaOH, NRC-H₂O) was estimated from for the data (relative change) of concrete samples measured during that period. Number of data available per group each week of the monitoring period would vary from 6 to 2. In addition, the standard deviation (SD in %) was calculated in order to estimate scatter about the mean value.

The container solutions of both mixtures were also analyzed in order to monitor changes in their ion concentration of ions (Al, Si, K, Ca, SO₄) during chemical reactions (ASR, cement hydration).

6.3.2 Destructive testing

Based on our pre-established schedule presented in Table 6.2, one sample from each of the four groups was selected to undergo destructive testing such as mechanical properties (modulus of elasticity, compressive strength), measurement of density and porosity, and mineralogical examinations. In order to optimize the mechanical tests, the two ends of the sample including the studs were cut out, therefore reducing the sample length by 2.5 cm at each end. The removed parts were used to conduct mineralogical analyses and estimate porosity and density for both mixtures. Mechanical tests were carried out in accordance with ASTM C39M-04a and ASTM C469M-14. The measurements were performed for two monitoring periods; at weeks 6, 10, 12, and 17 for RC samples, and at weeks 4, 7, and 12 for NRC mixtures.

Tableau 6.2 schedule for testing and monitoring concrete samples. * The samples tested by destructive analysis, # Number of concrete samples.

Group NRC \ Week	1-4	1-7	1-12	1-17	1-27
NaOH	#6*	#5*	#4*	#3*	#2, 1
H2O	#12*	#11*	#10*	#9*	#8, 7
Group RC \ Week	1-6	1-10	1-12	1-17	1-22
NaOH	#5, 6*	#4*	#3*	#2*	#1*
H2O	#12*	#11*	#10*	#9*	#8*, #7

The mineralogical characterization was performed on polished sections using a scanning electron microscope (SEM) equipped with energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS), making it suitable for elementary analysis. The X-ray maps and X-ray sum spectra resulting from EDS Data were used as an additional support to identify quantitative changes in the chemical elements such as Na, K, Ca, Al and Si at several selected spots. The density and porosity of concrete samples (RC, NRC) were estimated based on Archimedes' principle Mohazzab (2017) at weeks 6, 10, 12, and 22 for RC mixtures and at weeks 4, 7, and 22 for NRC samples.

Finally, petrographic examination of concrete samples (RC, NRC) was carried out by estimating the Damage Rating Index (DRI) on a polished section observed with a stereomicroscope at a magnification of 16. The DRI method consists in counting the petrographic features of deterioration to evaluate the damage in the concrete structure associated with ASR (Grattan-Bellew, 1995; Thomas, 2013). The estimated DRI numbers are multiplied by the weighing factors E. Grattan-Bellew and Danay (2010); Sanchez et al. (2015) to better represent the contribution of ASR to the overall damage level. The weighed values corresponding to each

defect are then summed up and the total is normalized for 100 cm² surface. It should be noted that, damage levels above 50 could be indicative of the extent of damage due to ASR in concrete incorporating fine and coarse reactive aggregates (Saint-Pierre et al., 2007; Rivard and Saint-Pierre, 2009; Boukari et al., 2010; Sanchez et al., 2015).

6.4 Experimental results

6.4.1 SIP measurement

Our measurement system allowed determining the electrical impedance across the concrete samples (reactive and reference) by using four-receiver electrodes (external layouts) placed symmetrically with regards to the middle of the sample length (Khajehnouri et al., 2019). Given that our electrical measurements showed a similar behaviour for two symmetrical dipoles (PE :1-2, PE :3-4), only the data measured from dipole PE :1-2 are presented here and used to compare the SIP laboratory results from the various samples in this paper.

As shown in our previous work (Khajehnouri et al., 2019), in order to yield significant impedance responses over the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz], the accuracy of the SIP measurement system (sample holder, current electrodes, potential electrodes, etc.) was obtained by using aluminum-bronze plates as current electrodes connected to the end faces of the sample. The contact resistance was reduced using a conductive gel inserted between the plates and the sample. The electric current was transmitted throughout the concrete cylinder by applying a source voltage of 1 V resulting in a current density lower than 10⁻³ A m⁻².

Figure 6.2 displays the electrical resistivity (ρ in $\Omega.m$) measured for both mixtures (RC, NRC) in the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz] over a period of 22 weeks. It is important to note that the number of measured responses decreased from 6 (week 4) to 2 (week 22) for RC samples in NaOH solution and RC in water (Figure 6.2a), and also from 6 (week 4) to 2 (week 22) for NRC samples in NaOH solution and NRC in water (Figure 6.2b). As mentioned in section 3, as time progressed one sample at a time was removed from monitoring to perform destructive testing and mineralogical analysis. Within each group of samples (RC-NaOH and RC-H₂O), measured responses were almost identical demonstrating that observation was repeated for similar material composition and saturating solution.

As expected, the electrical resistivity of concrete samples is more dependent on the salinity of the solution ($\rho_{(NaOH-concrete)} < \rho_{(H_2O-concrete)}$), the samples saturated with water (RC, NRC) showed a higher overall resistivity than the one saturated with NaOH solution (Figure 6.2 a,b). Both mixtures (RC, NRC) immersed in NaOH solution displayed an increase in resistivity with time (from weeks 4 to 22); however this increase was not the same for both.

For RC-NaOH samples (Figure 6.2a), the rate of change was greater than the one of NRC mixtures (Figure 6.2b) from weeks 4 to 17. At week 22, both mixtures reached a similar magnitude and suggests that NRC sample exhibited a significant positive jump in resistivity from weeks 17 to 22. The electrical resistivity from NRC and RC samples saturated with water are depicted in Figure 6.2. The results showed a similar evolution of electrical resistivity for both mixtures saturated with water over. There was an overall gradual increase in resistivity from 50 ohm.m to 80 ohm.m during the 22 weeks monitoring.

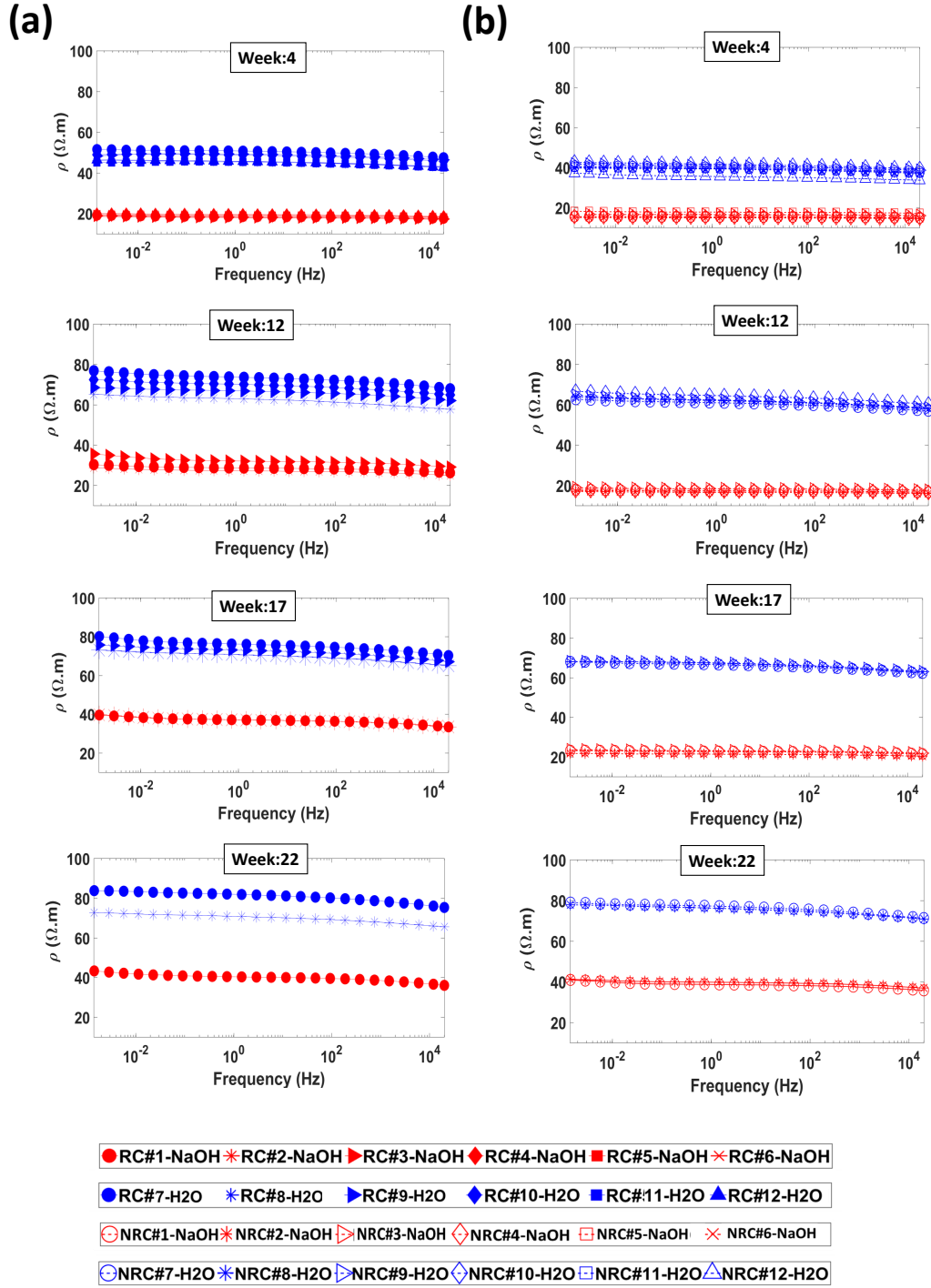


Figure 6.2 Monitoring the measured resistivity over 22 weeks. a) Reactive concrete samples saturated with H₂O (RC-H₂O : solid blue symbols) and NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{RC-NaOH} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{RC-H_2O} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively. b) Reference concrete samples saturated with water (NRC-H₂O : blue hollow symbols) and NaOH (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{NRC-NaOH} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ and $\rho_{NRC-H_2O} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at $24^\circ C$ from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.

As shown in Figure 6.3, the phase lag for frequencies <1 Hz showed a significative difference in the evolution from weeks 4 to 22. RC mixture displayed a rapid increase by about 5-30 mrad between weeks 4 and 22, whereas NRC mixtures saturated with the same solution (NaOH) displayed a phase lag of only 5-10 mrad from weeks 17 to 22. Also, we have observed an increase in phase lag for high frequencies ($f > 100$ Hz) that was correlated with the increase of electrical resistivity of concrete samples (RC, NRC) over a period of 22 weeks. This may result from the increase in the ratio $\omega\epsilon/\sigma$ estimating the dielectric (imaginary) contribution with regards to the galvanic (real) contribution in the sample resistivity (Revil and Florsch, 2010; Revil et al., 2013). The phase lag data showed an identical response for both mixtures saturated with water at different times over the full-frequency range [1.43 mHz-20 kHz](Figure 6.3).

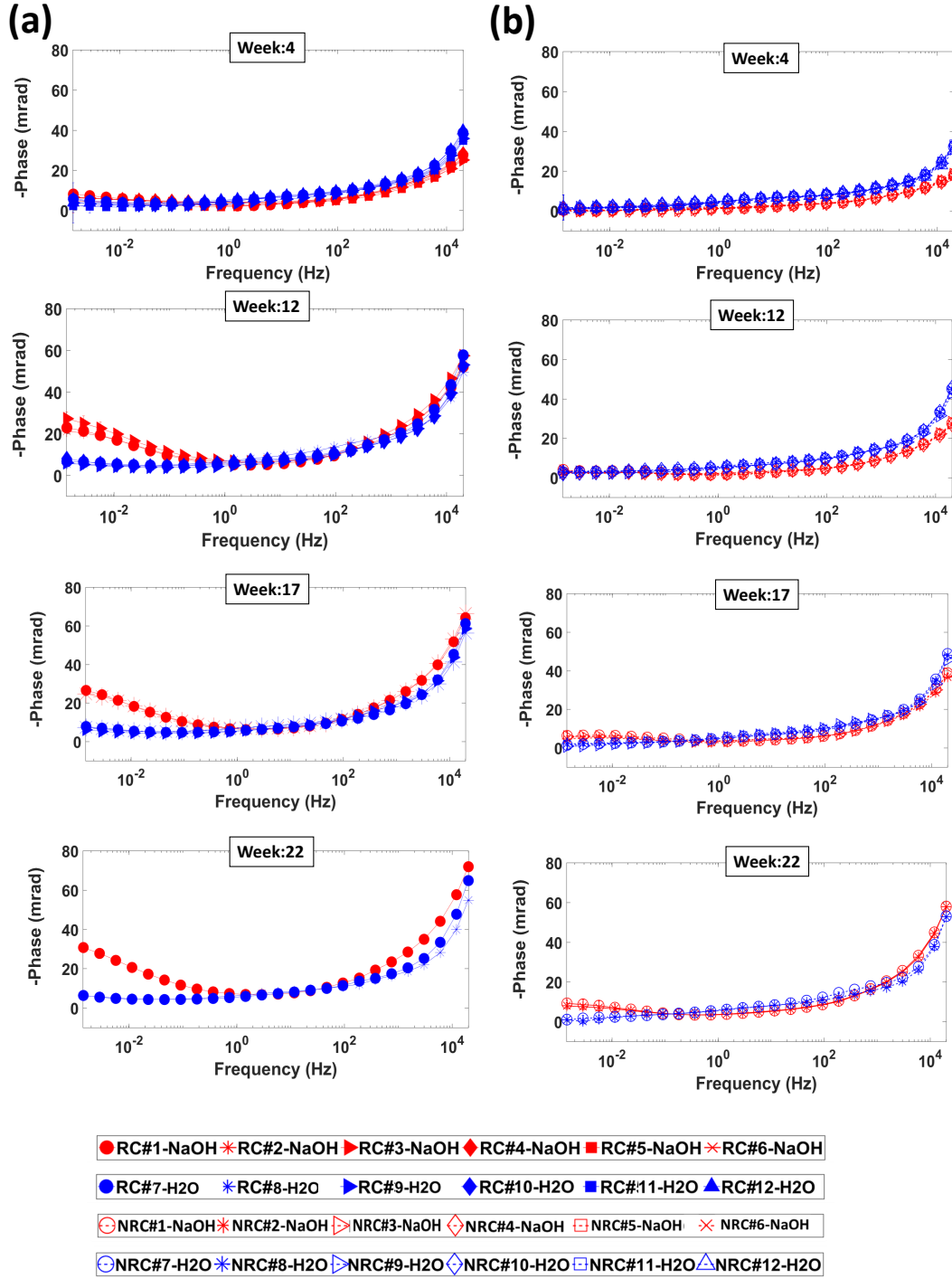


Figure 6.3 Monitoring the phase lag responses over 22 weeks. a) Reactive concrete samples saturated with H₂O (RC-H₂O : solid blue symbols) and NaOH (RC-NaOH : solid red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{\text{RC-NaOH}} \cong 0.062$ to $0.081 \Omega.m$ and $\rho_{\text{RC-H}_2\text{O}} \cong 1.24$ to $1.17 \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively. b) Reference concrete samples saturated with water (NRC-H₂O : blue hollow symbols) and NaOH (NRC-NaOH : hollow red symbols). The container solution resistivity values were $\rho_{\text{NRC-NaOH}} \cong 0.059$ to $0.067 \Omega.m$ and $\rho_{\text{NRC-H}_2\text{O}} \cong 1.25$ to $1.14 \Omega.m$ at 24°C from weeks 4 to 22, respectively. Error bars are smaller than the size of the symbols when not shown.

Debye decomposition

Once the complex resistivity measurement of concrete samples has been completed, the SIP data were fitted with a Debye decomposition model (DD) by the Bayesian inversion approach published by Bérubé et al. (Bérubé et al., 2017a). The characteristic integrating parameters (Σm , τ_{mean}) computed from the relaxation time distributions (RTD) that is as a function of the relaxation time (τ), and the DC bulk resistivity (ρ_0).

Figures 6.4 show the computed integrating parameters, total chargeability (Σm), mean relaxation time (τ_{mean}), and DC bulk resistivity (ρ_0), over the whole frequency range [1.43 mHz-20 kHz] for both mixtures saturated with two different solutions (NaOH, H₂O). While RC-NaOH samples showed a rapid increase in Σm from weeks 4 to 20, NRC-NaOH mixtures displayed only a slight increase in Σm from weeks 17 to 27 (Figures 6.4a). The change in τ_{mean} of RC-NaOH samples was strongly related to the duration of the experiment and increased by approximately 2-8 s from weeks 1 to 12, and remained constant during the last three weeks (Figure 6.4b). For NRC-NaOH, the integrating parameter τ_{mean} showed a slight increasing trend by about 1 s (week 5) to 4 s (week 17) and Σm from 2 % (week 17) to 4 % (week 27) (Figure 6.4b). As shown in Figure 6.4 a,b, the τ_{mean} and Σm of the concrete samples saturated with water (RC-H₂O and NRC-H₂O) remained quite similar for the frequency range 1.43 mHz-5.86 Hz. The ρ_0 values for both mixtures saturated with NaOH solution showed a similar increase with time somewhat smaller compared to the ones saturated with water (Figure 6.4 c) .

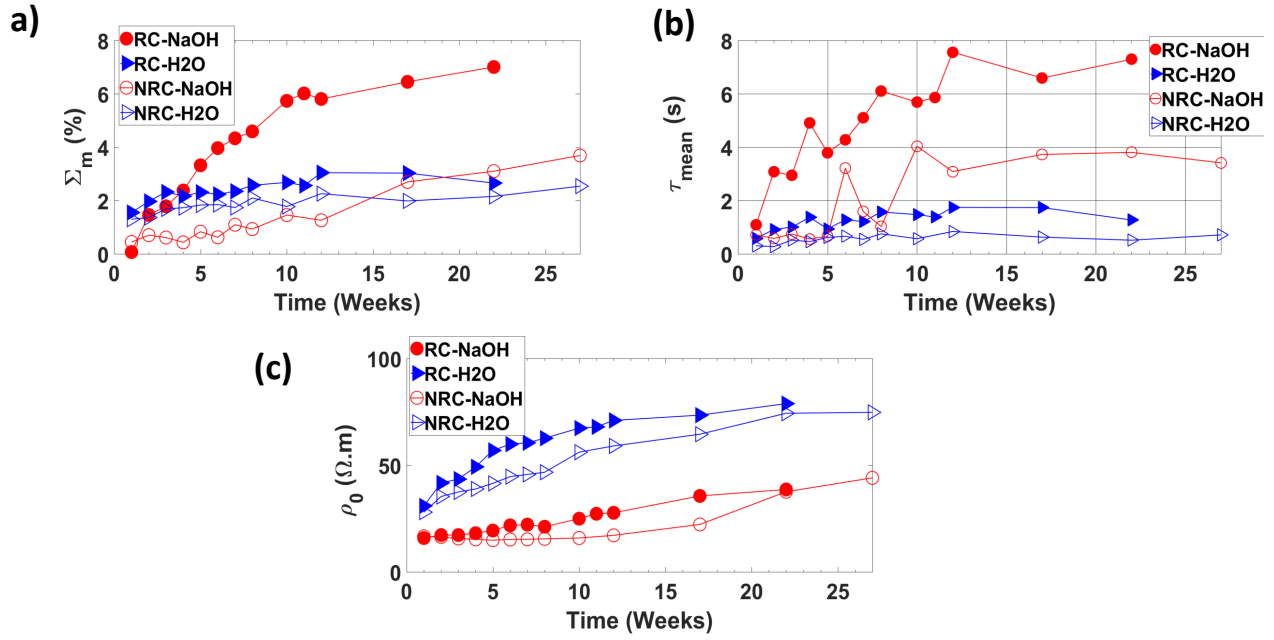


Figure 6.4 Correlation between DD integrating parameters of concrete samples saturated with water (RC-7-H2O and NRC-7-H2O) and with the NaOH solution (RC-1-NaOH and NRC-1-NaOH) at the low frequency range (1.43 mHz -5.86 Hz). (a) Variation of total chargeability (Σ_m) with time. (b) Variation of the mean relaxation time (τ_{mean}) with. (c) Variation of DC bulk resistivity (ρ_0) with time.

6.4.2 Mass variation

Figure 6.5a shows the average value of mass variation for each group of samples. The initial average masses were 2085g (RC-NaOH), 2078 g (RC-H2O), 2141 g (NRC-NaOH), and 2134 g (NRC-H2O). The mass variation of the reactive samples saturated with NaOH (RC-NaOH) displayed a rapid increase from 0.14% (SD 0.008 %) to 0.27% (SD 0.04 %) from week 1 to week 5 that was much higher compared to other groups (RC-H2O, NRC-NaOH, NRC-H2O)(Figure 6.5 a). It could be due to the formation of hydrophilic alkali silica gel that absorbs water, and finally leads to an acceleration of mass gain in microstructure affected by ASR (Smaoui et al., 2004). Then a sudden decrease occurred from 0.3% (week 5) to 0.1% (week 22), which could be caused by leaching out of the ASR gel through the concrete microcracks into the container solution. The loss in mass variation was validated by the bonded gel observed on the wall of concrete affected by ASR for the same period (Figure 6.5b). The mass variations of NRC-NaOH mixtures increased from 0.1% (SD 0.023 %) to 0.8% (SD 0.015

%) from weeks 5 to 22, showing the highest value compared to the other groups from weeks 10 to 22. This may be caused by precipitation reaction in the concrete microstructure specially for weeks 17 and 20 (0.77% - 0.8 %). Both mixtures (RC, NRC) saturated with tap water presented a slight increase in mass variation until week 12, and from then on remained quite constant (Figure 6.5a). Until week 12, the mass variation of NRC-H₂O samples was the smallest (0.1 %) compared to other mixtures (RC-NaOH, RC-H₂O, NRC-NaOH).

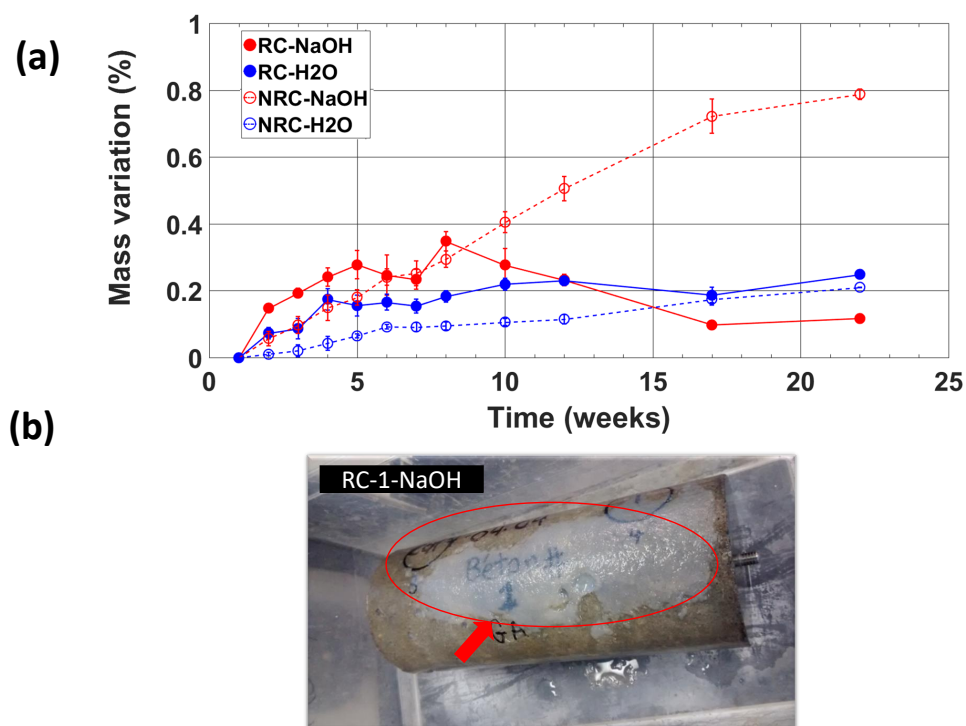


Figure 6.5 Comparison of mass variations for the reactive (RC) and reference concrete samples (NRC) over 22 weeks. (a) Mass variation data (error bars are one standard deviation). (b) The bonded ASR gel on the reactive concrete wall (RC-1-NaOH) that was observed from weeks 10 to 22.

6.4.3 Expansion

A comparison of mean length variations (expansion) is shown in Figure 6.6 for both mixtures (RC, NRC) saturated with NaOH and tap water (H₂O) solutions. The mixtures saturated with tap water (H₂O) did not show evolution of expansion with time after week 2. RC-NaOH mixtures displayed a rapid increase in expansion from 0.1% (week2) to 0.5% (week22). NRC-NaOH samples showed much lower expansion from 0.02% (week2) to 0.2% (week12) compared to RC-NaOH over the same period; but from weeks 17 to 22, the expansion of NRC-NaOH

increased rapidly to 0.37% (Figure 6.6).

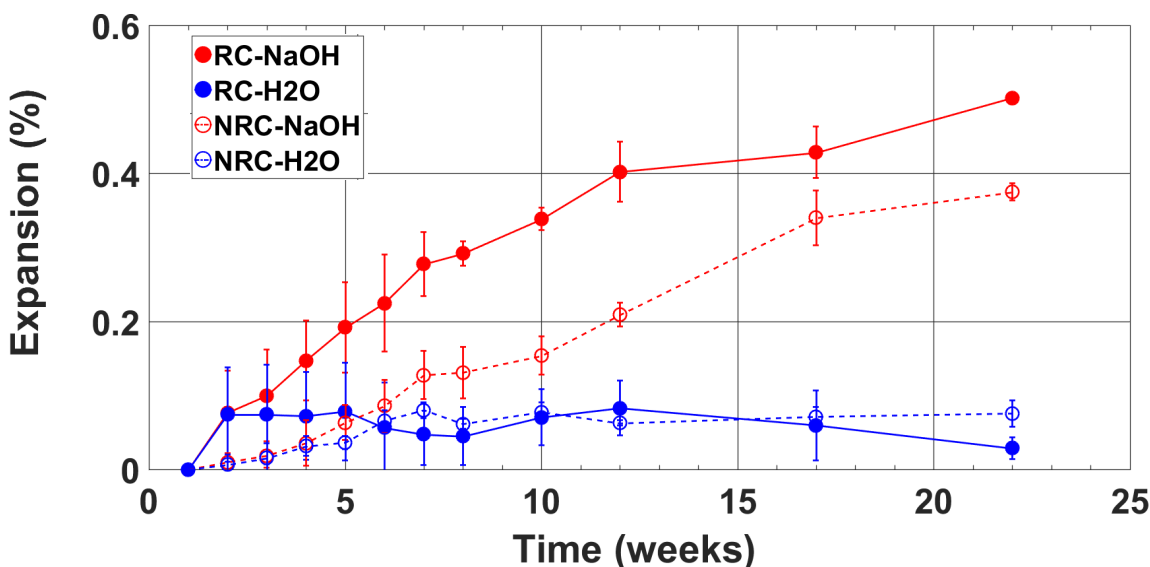


Figure 6.6 Mean length variation (expansion) for reactive (RC) and reference concrete (NRC) with time. Error bars are plotted when higher than the symbol sizes.

6.4.4 Ultrasonic pulse velocity

Variations in UPV (Figure 6.7a) showed an increasing trend with time that reached 5.0% for both mixtures saturated with H₂O (RC-H₂O, NRC-H₂O) over a period of 22 weeks. The initial averaged velocities for each group were respectively : RC-NaOH : 3706 *m/s*, RC-H₂O : 3916 *m/s*, NRC-NaOH : 3905 *m/s*, NRC-H₂O : 3970 *m/s*). Velocities of RC-NaOH showed a rapid decrease from 1% (week 4) to 6% (week 8), and then remained nearly constant until week 22. The P-velocity of NRC-NaOH mixtures was relatively constant and greater than RC-NaOH until week 8, then it slightly decreased from 1% (week 10) to 4% (week 22). In this case, the velocity increase in RC-H₂O and NRC-H₂O samples could be due to hardening of the concrete matrix of concrete structure with time : while RC-NaOH and NRC-NaOH velocities monitored the damage caused by ASR.

Since, UPV is very sensitive to the micro-cracking of concrete if the ASR is well developed (Swamy and Al-Asali, 1988; Ahmed et al., 2003), we can expect that the UPV variation could be associated with expansion. As shown in Figure 6.7b, UPV of RC-NaOH decreased to 5% for an expansion level of 0.2%, while NRC-NaOH displayed UPV variation of 2% for the same expansion level. In this case, RC-NaOH samples showed a rapid and significant correlation between expansion and velocity compared to NRC-NaOH samples until week 12. For the last

monitoring weeks (17, 22), NRC-NaOH samples showed an increased of expansion level to 0.37% for a decrease of 3% in UPV variation compared to RC-NaOH concrete samples with a UPV decrease of 6% for the expansion level 0.4 % to 0.5 %.

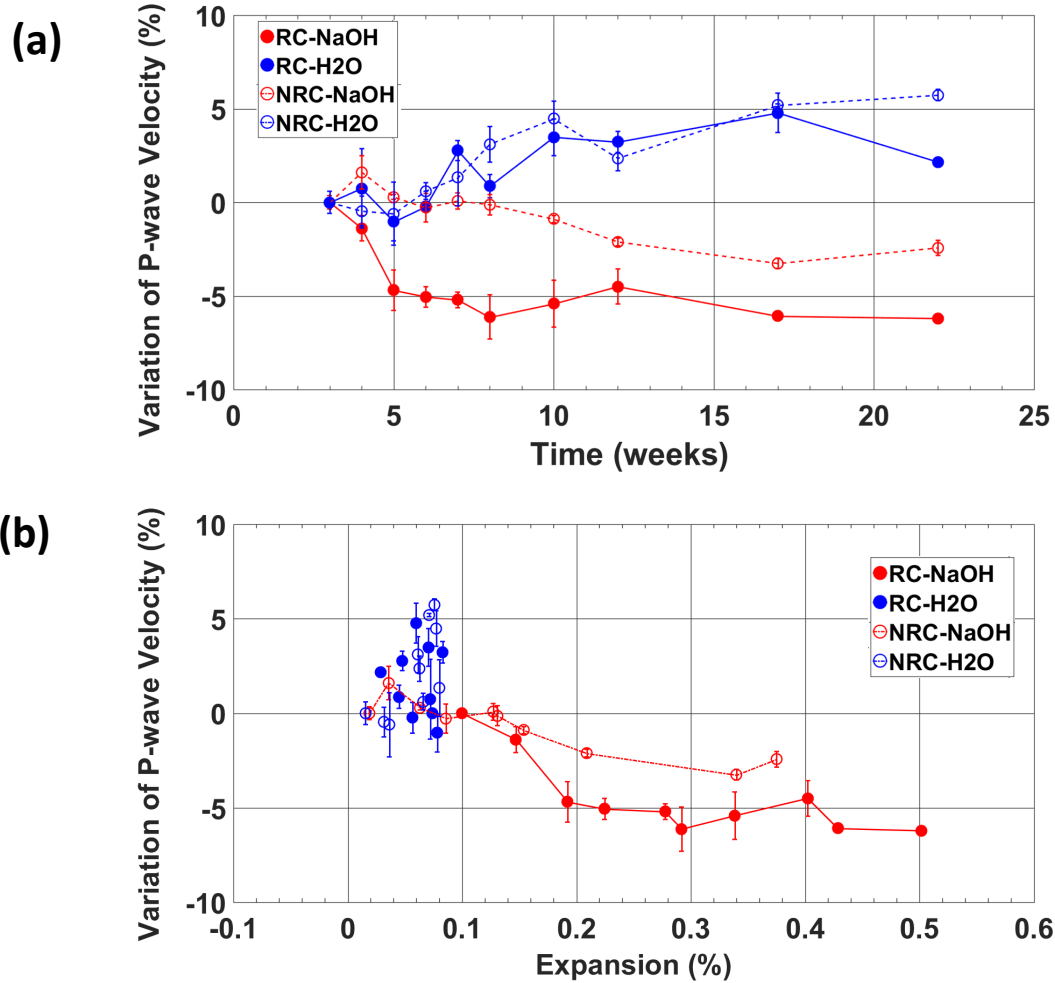


Figure 6.7 Comparison of physical and mechanical properties of concrete mixtures (RC, NRC). (a) Variation of velocity with time. (b) Correlation between UPV variation and expansion. Error bars are plotted when higher than the symbol sizes.

6.4.5 Compressive strength

Destructive mechanical tests were carried out at weeks 4, 7, and 12 for NRC mixtures. It should be noted that both tests, modulus of elasticity and compressive strength, were performed at the same time on each selected sample. Figure 6.8 shows the determination of compressive strength for the four groups of samples at different times during the experiment.

The compressive strength of accelerated reactive samples saturated with NaOH (RC-NaOH) decreased from 35 MPa (week 6) to 30 MPa (weeks 12 and 17). This was lower in general than the compressive strength recorded for reference sample in H₂O, that showed an increasing trend of compressive strength from 39 MPa (week 4) to 51 MPa (week 12). In general, we observe two types of compressive strength response completely opposite for the RC and NRC samples in the NaOH solution on the one hand, and RC and NRC samples in tap water on the other hand. The former decreases from about 37 MPa to 30 MPa, while in the same time period the later increases from 37 MPa to about 50 MPa. But it should be note that NRC-NaOH and RC-H₂O mixtures did not show a significant evolution of Compressive strength with time.

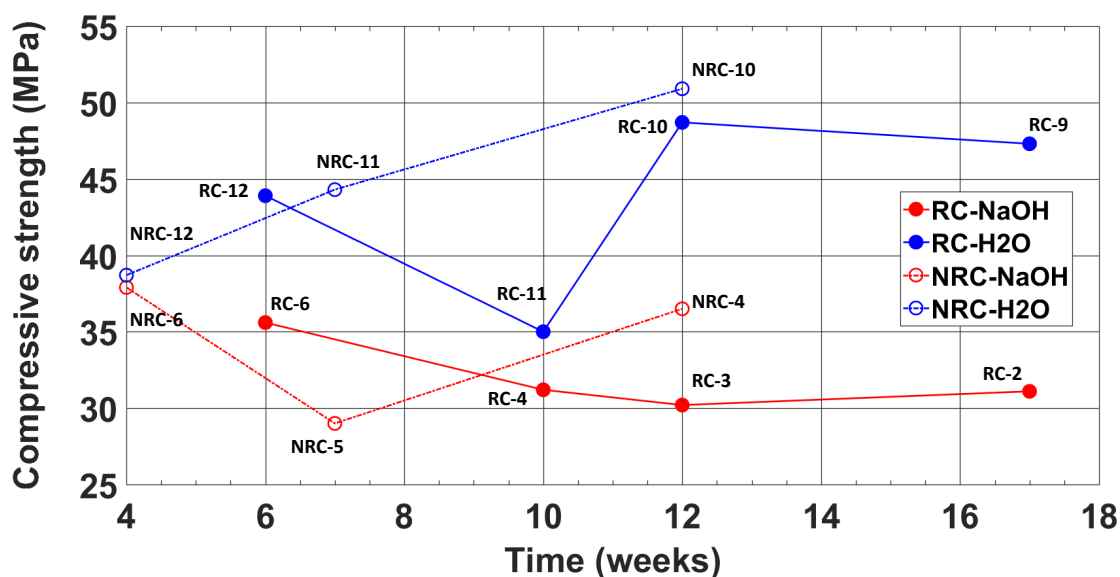


Figure 6.8 Compressive strength of concrete samples (RC, NRC) saturated with NaOH and tap water (H₂O) solution. As measurement can be done only once for each sample (no monitoring possible), the number of the selected sample is indicated.

6.4.6 Modulus of elasticity

RC-NaOH samples showed a low modulus of elasticity (~ 17 GPa) almost constant for four different samples from week 6 to week 17 (Figure 6.9a). RC samples saturated with tap water showed a higher value of ~ 30 GPa, similarly time invariant. NRC-NaOH samples displayed a decreasing trend from 38 GPa (week 4) to 20 GPa (week 12), while during the same period,

the modulus of elasticity of NRC-H₂O samples remained more or less unchanged (about 40 GPa).

As UPV and modulus of elasticity (E) are related for homogeneous media, and that both indicators should be affected by damage caused by ASR, we expect that a plot of E vs UPV should allow discriminating samples affected by ASR from the non-affected ones. Figure 6.9b shows that in fact accelerated reactive mixtures (RC-NaOH) are in a class of its own with reduced velocities and modulus of elasticity. Both reactive and reference samples in H₂O show high velocities combined with high E values, the reference samples displaying somewhat the higher values of E .

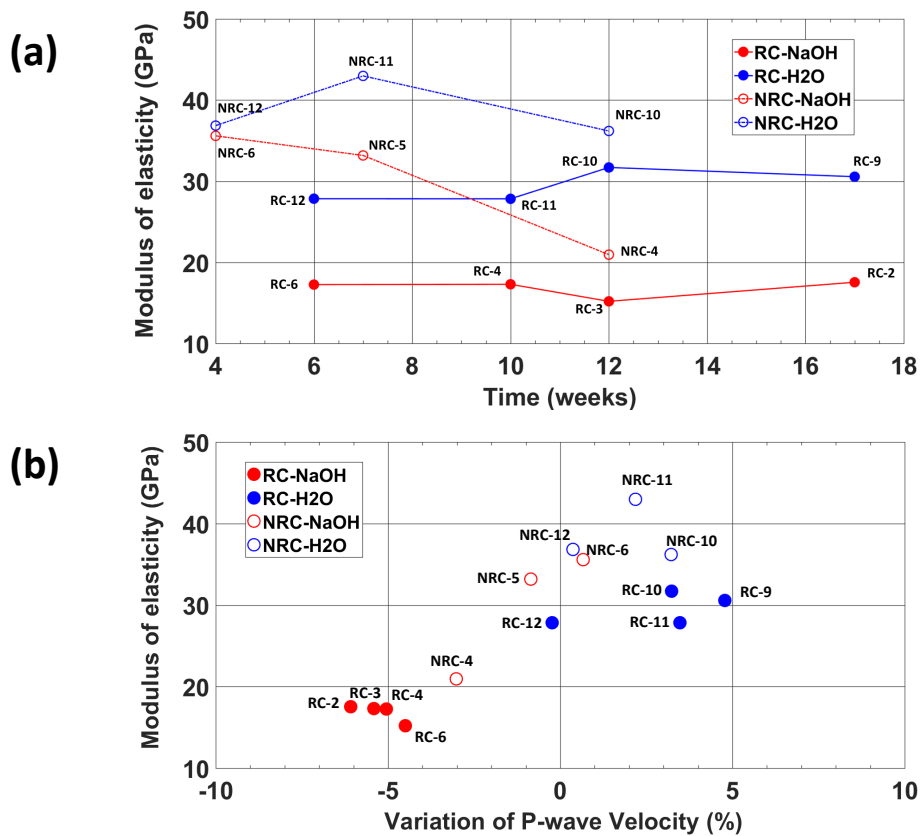


Figure 6.9 Comparison of physical and mechanical properties of concrete mixtures (RC, NRC). a) Modulus of elasticity of samples. As measurement can be done only once for each sample (no monitoring possible), the number of the selected sample is indicated. b) Correlation between modulus of elasticity and variation of P-wave velocity (%).

6.4.7 Mineralogical characterization

The Figure 6.10 presents the petrographic analysis of reactive concrete samples saturated with H₂O (RC-9-H₂O) and NaOH (RC-2-NaOH) at week 17. The SEM images of RC-H₂O showed lower amount of microcracking in concrete microstructure compared to RC-NaOH (Figure 6.10a). The X-ray spectra data and X-ray map of the same sample did not display significant changes related to ASR reaction, only for the concentration of Ca in cement paste, K, Si, and Al in aggregate, which mainly consist of alkaline feldspar (Figure 6.10b,c).

The SEM image of RC-2-NaOH sample showed microcracking through the cement paste and aggregates (Figure 6.10d). The disaggregated particles were also observed in concrete structure due to the ASR development with time. While X-ray sum spectra data did not show particular changes in chemical compositions of RC-2-NaOH compared to RC-9-H₂O (Figure 6.10b, e), X-ray examinations showed high concentrations in Na, Si, Ca, and Al, and a low concentration in K for disaggregated aggregate particles and some part of its interface with cement paste at week 17 (Figure 6.10f).

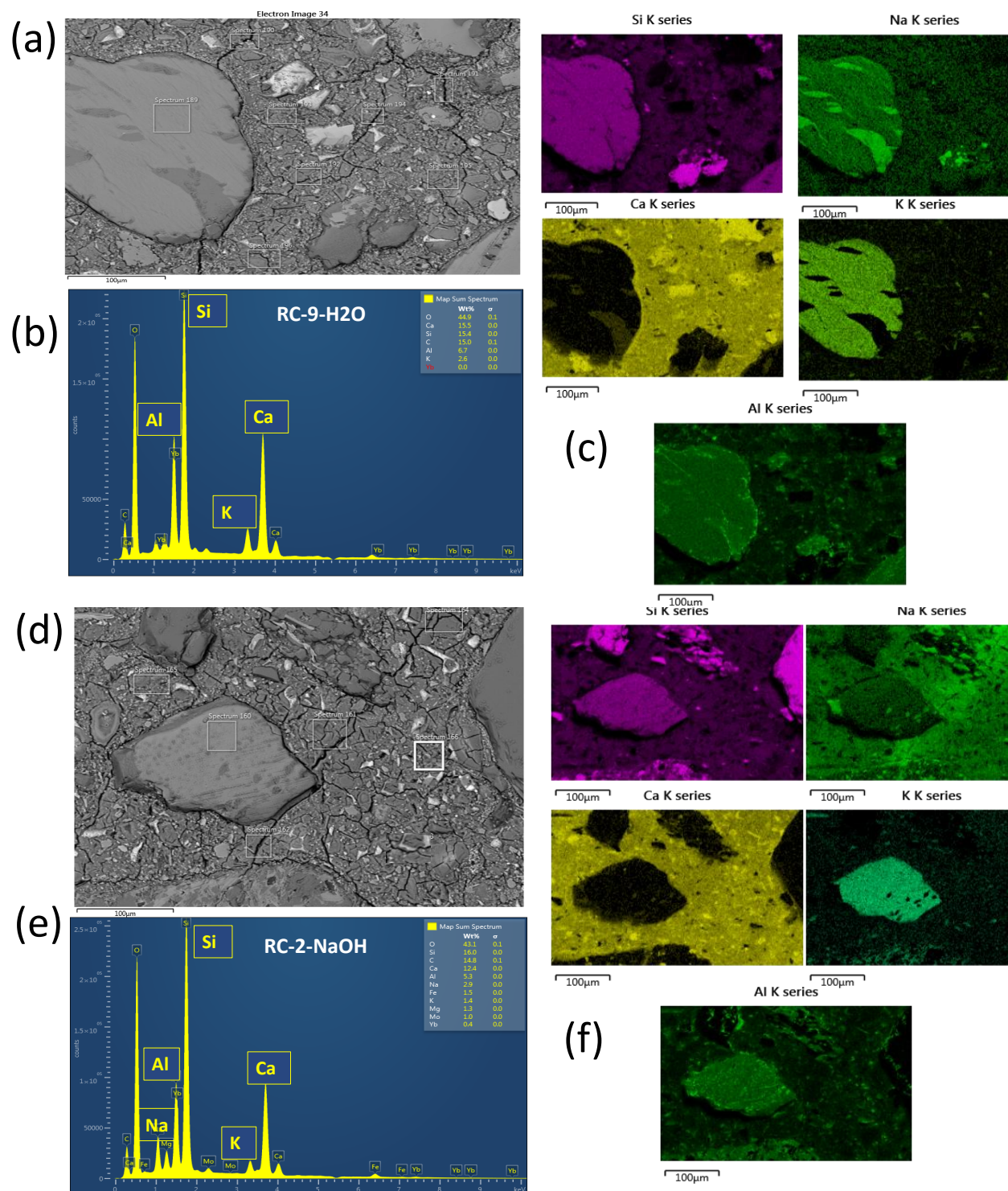


Figure 6.10 SEM/EDS examinations of reactive concrete samples for RC-9-H₂O (a, b, c) and RC-2-NaOH (d, e, f) at Week 17. a) SEM image. b) X-ray sum spectra (weight %); the sum spectrum is calculated from the data acquired from all the pixels in the electron image. c) Maps consist in the individual phase maps related to the distribution of Si, Na, Ca, K, and Al displayed with different colors. Brighter colors indicate high concentrations of the chemical element. (SEM micrograph-scale = 100 µm).

Figure 6.11 displays the SEM/EDS results of the reference concrete samples saturated with tap water (NRC-9-H₂O) and NaOH solution (NRC-3-NaOH). The SEM/EDS results of NRC-9-H₂O did not show significant change in concentration of chemical elements at week 17 (Figure 6.11 a,b,c), while at the same period for NRC-3-NaOH, the cracks appeared in particular at the aggregate-cement interface, in some parts of the cement matrix, and in the coarse aggregate (Figure 6.11d). The X-ray sum spectra data showed high concentration in Ca and K for NRC-3-NaOH compared to the NRC-H₂O (Figure 6.11b,e); element mapping showed the high concentrations of Na, K, Si, Ca at the aggregate-cement interface, through the cement matrix, and some sections of corroded aggregates for NRC-3-NaOH sample (Figure 6.11f). This observation could be related to the formation of a reactive gel, resulting in expansion at weeks 17 and 22 (subsection 3.2). It is worth noting that although this mixture was considered as the reference concrete, it showed reactivity of the aggregates to ASR in alkali boosted concrete tested in severe conditions (1 N NaOH at 60°C).

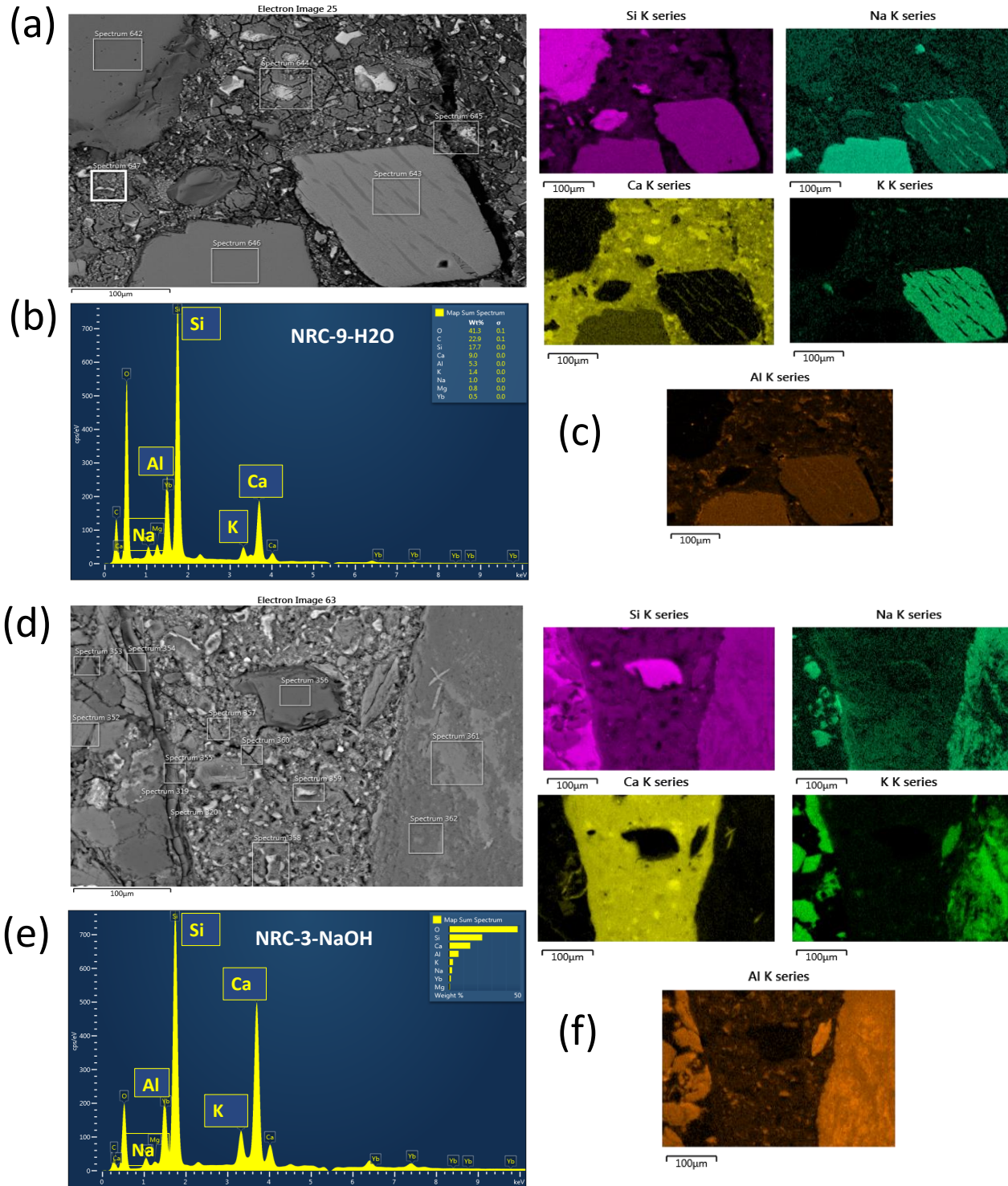


Figure 6.11 SEM/EDS examinations of reference concrete samples for NRC-9-H₂O (a, b, c) and NRC-3-NaOH (d, e, f) at Week 17. a) SEM/EDS examinations for saturated with NaOH . b) X-ray sum spectra (weight %); the sum spectrum is calculated from the data acquired from all the pixels in the electron image. c) Maps consist in the individual phase maps related to the distribution of Si, Na, Ca, K, and Al displayed with different colors. Brighter colors indicate high concentrations of the chemical element. (SEM micrograph-scale = 100µm)

6.4.8 Damage Rating Index

Figure 6.12 displays the petrographic features of the reference sample immersed in NaOH solution. NRC-2-NaOH sample exhibited significant presence of open cracks (CCA, OCA), and cracks filled with reaction products through the cement paste (CCPG) and the coarse aggregates (OCAG). The dark reaction rim (RR) around several coarse aggregates was observed in NRC-NaOH microstructure (Figure 6.12).

It should be noted that the DRI test could not be performed on the accelerated reactive sample (RC-NaOH) due to the severe damage in the concrete structure caused by ASR.

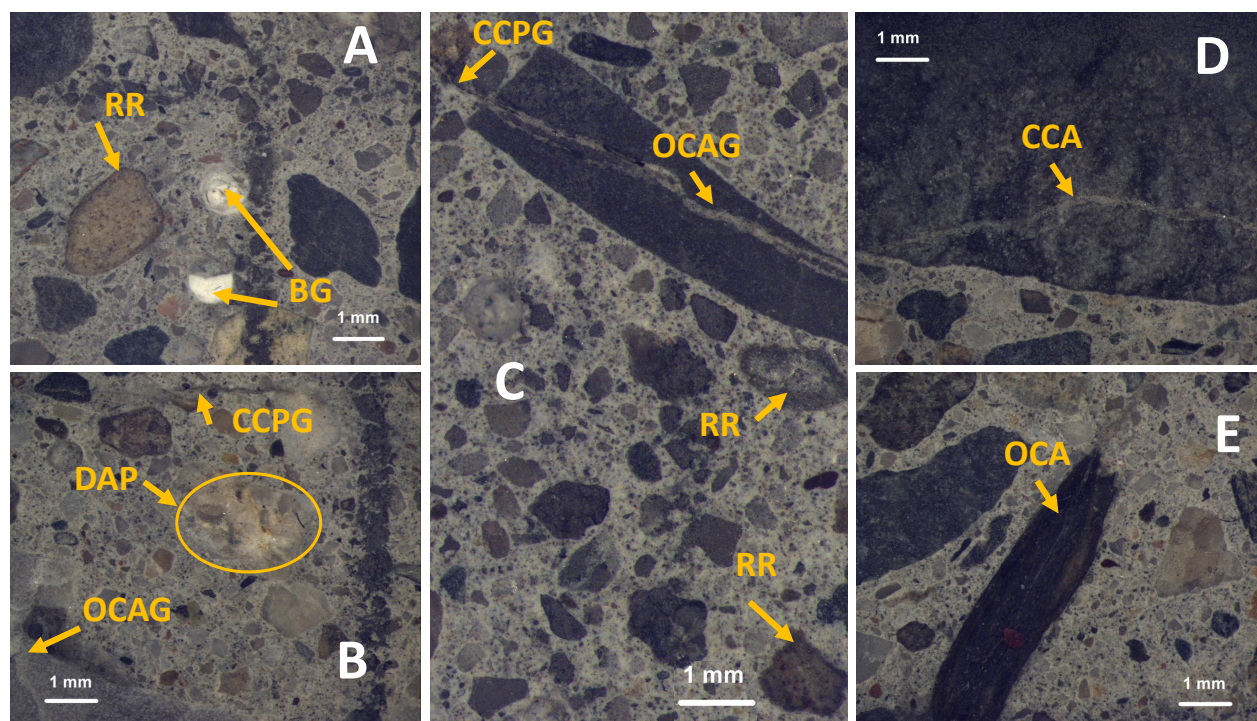


Figure 6.12 Petrographic features of reference concrete saturated with NaOH (NRC-2-NaOH) for week 22. CCA : Cracks in coarse aggregate, OCA : Opened cracks in coarse aggregates, OCAG : Crack with reaction product in coarse aggregate, CCPG : Cracks with reaction product in cement paste, DAP : Disaggregated aggregate particles, RR : Reaction rim, BG : air bubbles filled with the gel. A, B, C, D, E are the different polished sections with the petrographic symptoms observed in the same concrete sample.

The results of the DRI test on three different samples (NRC-2-NaOH, NRC-7-H₂O, RC-7-H₂O) are summarized in Figure 6.13. DRI values of open cracks in coarse aggregates (OCA : 100) and cracks with reaction products in cement paste (CCPG : 60) were found for NRC-2-NaOH sample, which shows an expansion of 0.37% at week 22. Low DRI estimates were

found for both mixtures (RC, NRC) saturated with H₂O, which correspond to low expansion values (RC-7-H₂O : 0.03%, NRC-7-H₂O : 0.06%) at week 22 (Figure 6.13). RC-7-H₂O sample displayed a DRI number of about 15 for OCA compared with a value of 2 for NRC-7-H₂O sample.

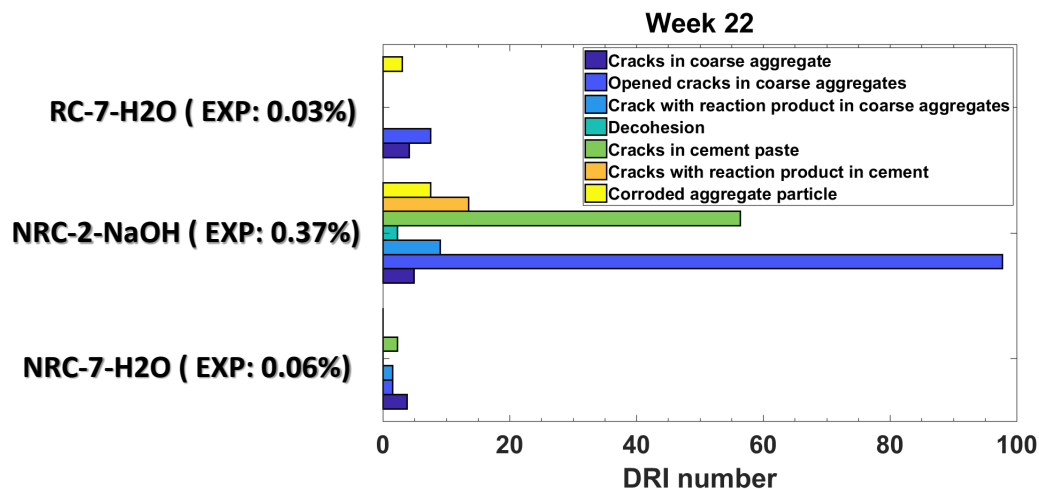


Figure 6.13 Results of the Damage Rating Index (DRI) of concrete samples at week 22. DRI charts are plotted for the concrete sample submitted to accelerated condition with 0,37 expansion (NRC-2-NaOH), and to non-accelerated condition with 0.03% (RC-7-H₂O) and 0.06% (NRC-7-H₂O). EXP : expansion.

Figures 6.14 shows the petrographic features of reference sample saturated with tap water (NRC-7-H₂O). Few open cracks in coarse aggregates (OCA) and in cement matrix were found for NRC-7-H₂O sample (Figures 6.14).

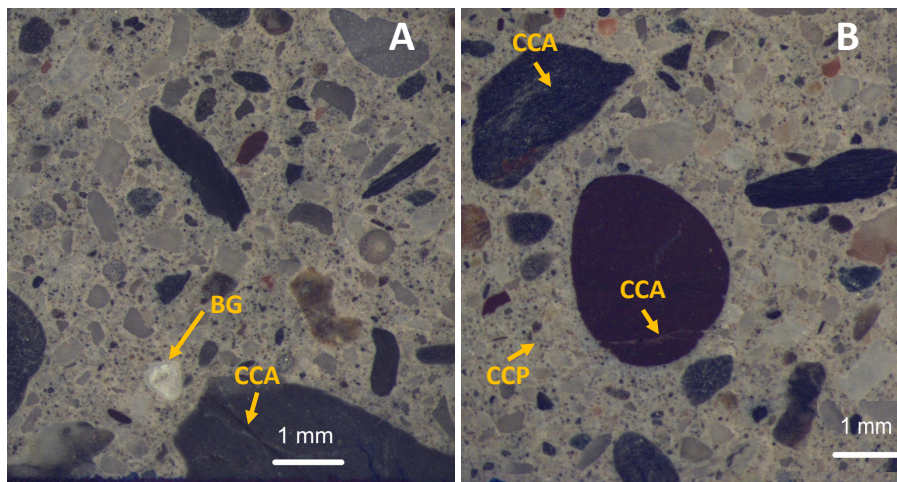


Figure 6.14 Petrographic features of reference concrete saturated with tap water (NRC-7-H₂O) for week 22. CCA : Cracks in coarse aggregate, OCA : Opened cracks in coarse aggregates, OCAG : Crack with reaction products in coarse aggregate, CCP : Cracks in cement paste, CCPG : Cracks with reaction product in cement paste, DAP : Disaggregate/corroded aggregate particles, RR : Reaction rim, BG : air bubbles filled with the gel. A, B are the different polished sections with the petrographic symptoms observed in the same concrete sample.

6.4.9 Porosity and density

Tables 6.3 and 6.4 present the values of density and porosity measured from both mixtures (RC, NRC). RC-NaOH samples showed a general increase in porosity approximately from 12% to 15.4% from weeks 6 to 12. This was expected since the formation of the porous ASR gel caused development of the microcracks in the structure of the reactive concrete (RC) over time. It is worth noting that RC samples showed slightly higher porosity ($\simeq 13\%$) than NRC ($\simeq 11.5\%$), and lower densities (2.37 compared to 2.45) (Table 6.3, Table 6.4). It could be caused by an increase in bulk volume that lead to cracks in ASR-affected concrete. It should be noted that no significant difference was found among these properties (density, porosity) of each mixture (RC, NRC) according to different saturating solutions (NaOH, H₂O). As a result, these physical parameters do not seem to be effective at detecting ASR development. The porosity and density of RC samples for week 17 and NRC for week 12 are not reported since severe structural damage prevented accurate measurements.

Tableau 6.3 Porosity and density of the reactive concretes.

sample	Week	Porosity %	Wet density	Dry density	Grain density (g/cm ³)
RC6-NaOH	6	10	2.37	2.27	2.52
RC4-NaOH	10	15.8	2.33	2.17	2.58
RC3-NaOH	12	15.4	2.35	2.2	2.6
RC1-NaOH	22	12.5	2.37	2.25	2.57
RC12-H2O	6	12.3	2.39	2.26	2.61
RC11-H2O	10	13.3	2.38	2.25	2.6
RC10-H2O	12	15.5	2.33	2.17	2.57
RC8-H2O	22	11	2.36	2.25	2.53

Tableau 6.4 Porosity and density of the non-reactive concretes.

sample	Week	Porosity%	Wet density	Dry density	Grain density (g/cm ³)
NRC6-NaOH	4	11.5	2.44	2.33	2.63
NRC5-NaOH	7	12.5	2.44	2.32	2.65
NRC3-NaOH	22	10.5	2.45	2.35	2.62
NRC12-H2O	4	11.5	2.45	2.34	2.65
NRC11-H2O	7	12.3	2.46	2.34	2.66
NRC9-H2O	22	10	2.48	2.38	2.64

6.4.10 Container solution analysis

The chemical analyses of the container solution (saturating electrolytes ; NaOH, H₂O) of both mixtures (RC, NRC) were performed to monitor changes in the concentrations of chemical ions (Al, Si, K, Ca, SO₄) in the saturating solutions as proxies for the chemical reactions (hydration, ASR). It allows indirect estimation of the chemistry of the pore solution in concrete microstructure at each sequence of measurements (destructive and non-destructive techniques).

Figure 6.15 shows the concentrations of chemical elements of the container solution for each group of concrete samples (RC-NaOH, RC-H₂O, NRC-NaOH, NRC-H₂O) at weeks 6 and 22. A major increase in Si concentration from 1000 mg/l (week 6) to 3000 mg/l (week 22) was observed for the solution of RC-NaOH samples (Figure 6.15 a). During the same period of time, Si concentration for NRC-NaOH samples significantly increased from 20 mg/l to 500-600 mg/l (Figure 6.15 c). The Si concentration of NaOH solution for both mixtures was much higher compared to the tap-water solution for the same samples (< 5 mg/l) (Figure 6.15 b, d). The container solution of H₂O-saturated mixtures (RC, NRC) displayed high Ca concentrations compared to the ones saturated with NaOH. This could be caused by pozzolanic reaction which produces calcium-silicate-hydrate (CSH gel) (Lindgard et al., 2012; Thomas et al., 2013). Low concentration in Ca for both samples immersed in NaOH solution may be due to the formation of reactive gel rich in Ca through the ASR development (Ferraris, 1995; Lindgard et al., 2012) (Figure 6.15 a, c). Both mixtures saturated with NaOH did not show

significant changes in concentration Al, K (Figure 6.15a, c), while SO_4 concentration appeared much higher over time compared to the samples saturated with tap water (Figure 6.15b, d). The dissolution of SO_4 could be due to chemical reaction of the cement paste (gypsum) in presence of NaOH solution at high temperature (Ferraris, 1995).

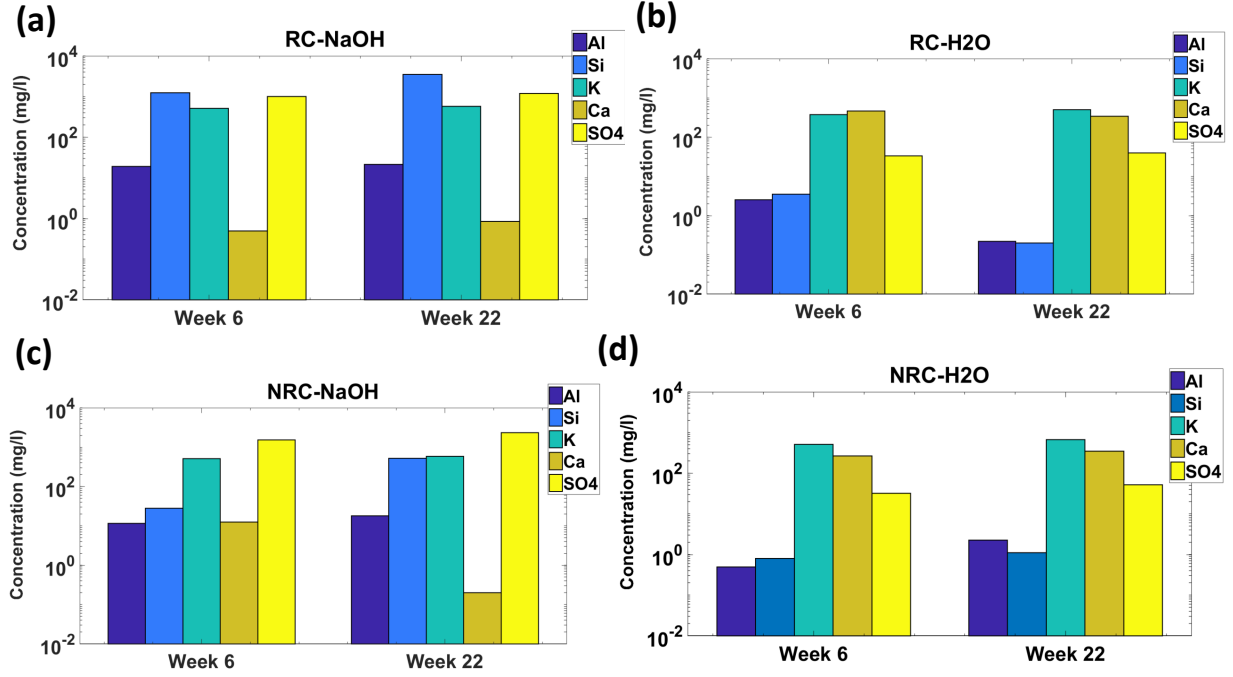


Figure 6.15 Comparison of chemical elements concentration in different container solution for both mixtures (RC, NRC) from weeks 6 and 22. a) RC-NaOH. b) RC-H2O. c) NRC-NaOH. d) NRC-H2O.

6.5 Comparison with SIP responses

In order to characterize the polarization mechanisms taking place in concrete microstructure, the electrical integrating parameters (total chargeability (Σm), mean relation time (τ_{mean}) was computed using the Bayesian Debye decomposition (Nordsiek and Weller, 2008; Bérubé et al., 2017a). τ_{mean} and Σm were the average value of a set of concrete samples for each group (RC-NaOH, RC-H2O, NRC-NaOH, NRC-H2O) over the monitoring period. Figure 6.16 shows the correlation between these electrical integrating parameters at very low frequency (1.43 mHz-5Hz) and the expansion of concrete samples. No correlation was found between expansion and electrical complex responses of both mixtures (RC, NRC) saturated with tap water (H2O). The mean relation time (τ_{mean}) of RC-NaOH mixtures displayed a quasi-linear

increase from 2 % to 6.5% with expansion from 0.1 % to 0.5 % (Figure 6.16 a). RC-NaOH sample also showed a significant linear correlation between total chargeability (Σm) and expansion ranging from 1 % to 6 % and from 0.1 % to 0.5 %, respectively (Figure 6.16 b). NRC-NaOH mixtures showed some correlation between τ_{mean} and expansion (Figure 6.16 a) but with some scatter. The case of NRC-NaOH sample is of interest since the total chargeability Σm displayed a quasi-linear increase from 0.5% to 3% with expansion from 0.05% to 0.37 % somewhat lower compared to RC-NaOH but yet significant. (Figure 6.16 b).

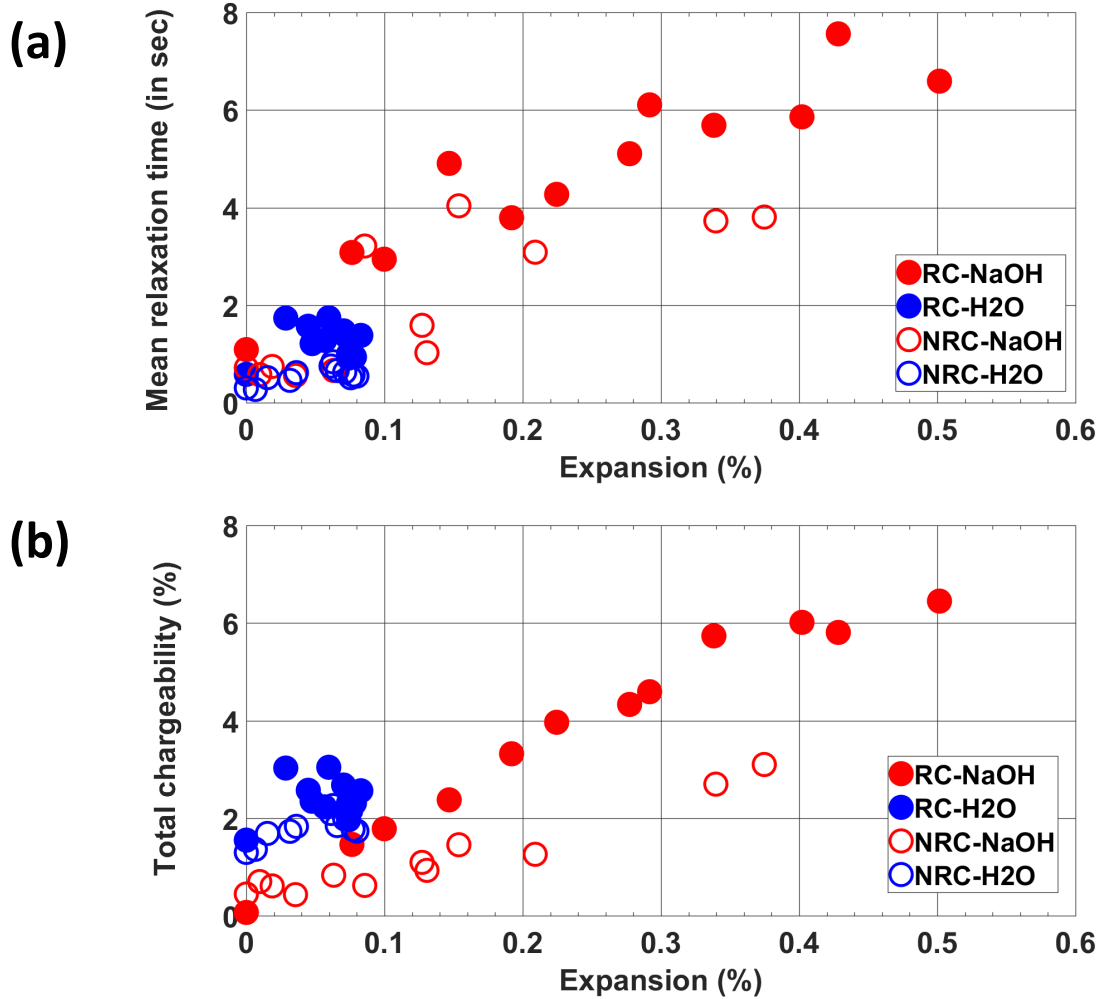


Figure 6.16 Correlation between complex electrical resistivity responses and the expansion of reactive (RC) and reference (NRC) concrete samples. (a) Total chargeability versus expansion. (b) Mean relaxation time versus expansion.

6.6 Discussion

The main objective of this paper is to validate the potential value of spectral induced polarization (SIP) method for detection of ASR at an early stage of development in concrete. As the results have shown, a significant correlation was found between DD integrating parameters (Σm , τ_{mean}) and expansion for the affected concrete mixtures by ASR. These tendencies for RC-NaOH became higher compared to NRC-NaOH mixtures, which displayed later the same behaviour as the reactive samples from weeks 17 to 22. This observation was also confirmed by other measurements specially expansion, UPV, and modulus of elasticity for the same samples. In this regard, the petrographic examination of affected sample by ASR showed a significant presence of open cracks, cracks filled with ASR gel through the coarse aggregates, and a dark reaction rim around some aggregates. Previous studies (Prezzi et al., 1997; Chatterji, 2005; Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013; Comi et al., 2014) showed that complex electrical parameters (phase lag, Σm , τ_{mean}) can be affected by the electrical double-layer EDL formed (net surface charge) at the solid–solution interface through the ASR development (gel production with large specific surface). In this regard, the evolution of Σm and τ_{mean} can be due to the volumetric production of ASR gel through the microcracking observed in the aggregates and cement paste (see our DRI analysis in Figure 6.12). It should be noted that the evolution of τ was associated with an increase in chargeabilities with time in the relaxation time range of aggregates.

Table 6.5 provides a summary of some signatures detectable by the non-destructive and destructive techniques that were conducted on our concrete samples (RC, NRC). According to our observations, expansion, DRI analysis, modulus of elasticity and UPV data were more sensitive to discriminate concrete samples affected or not by ASR. This is basically what has been before observed by other works Swamy and Al-Asali (1988); Ahmed et al. (2003); Fournier and Bérubé (2000); Marzouk and Langdon (2003); Turanli et al. (2003); Haha et al. (2007); Fournier et al. (2010). As reported by other researchers, compressive strength is not very sensitive to establish damage criteria associated with ASR in affected concrete with low expansion, (Fournier et al., 2010; Multon et al., 2005; Fujii et al., 1987; Marzouk and Langdon, 2003).

Finally, our work demonstrates the sensibility of SIP responses as measured by Σm and τ_{mean} to establish damage criteria associated with ASR development, the latter evidenced mainly by expansion, UPV, modulus of elasticity and petrographic examination.

Tableau 6.5 Simplified table summarizing the signatures of the concrete samples using the laboratory techniques, submitted to accelerate test conditions (saturation, 60 °C). NSR : No Significant response. ↓ : slight decreasing. ↑ : slight increasing. ↓↓ : significant decreasing. ↑↑ : significant increasing. ~ : similar. > : higher symbol. < : lower symbol. τ_{mean} : mean relaxation time. M_n : normalized chargeability. Σ_m : total chargeability. V_p : P-velocity. NA : not available.

Non-destructive testing					
	Signatures	RC-NaOH	RC-H2O	NRC-NaOH	NRC-H2O
SIP	Week	4-22	1-22	17-22	1-22
	Parameters	$\Sigma_m^{\uparrow\uparrow}, \tau_{mean}^{\uparrow\uparrow}$	NSR	$\Sigma_m^{\uparrow}, \tau_{mean}^{\uparrow}$	NSR
UPV	Week	4-22	4-22	8-22	4-22
	Parameters	$V_p \downarrow\downarrow$	$V_p \uparrow\sim$	$V_p \downarrow$	$V_p \uparrow\sim$
Expansion	Week	4-22	1-22	17-22	1-22
	Parameters	$\Delta L/L \uparrow\uparrow$	NSR	$\Delta L/L \uparrow$	NSR
Mass	Week	2-5 , 6-22	4-12	2-22	4-12
	Parameters	$m \uparrow\uparrow, m \downarrow\downarrow$	$m \uparrow\sim$	$m \uparrow$	$m \uparrow\sim$
Destructive testing					
	Signatures	RC-NaOH	RC-H2O	NRC-NaOH	NRC-H2O
Compressive strength	Week	6-12	6-12	4-12	4-12
	Parameters	$f_c \downarrow$	NSR	NSR	$f_c \uparrow\uparrow$
Modulus of elasticity	Week	6-17	6-17	4-12	4-12
	Parameters	$E \downarrow$	$E \uparrow$	$E \downarrow\downarrow$	$E \uparrow$
DRI	Week	22	22	22	22
	Parameters	NA	$\downarrow\sim$	$\uparrow\uparrow$	$\downarrow\sim$
Porosity	Week	7-12	7-12	4-22	4-22
	Parameters	$\Phi \uparrow$	$\Phi \uparrow$	$\Phi \downarrow\sim$	$\Phi \downarrow\sim$

6.7 Conclusion

This paper presented a method allowing the discrimination of ASR-affected from non-affected concrete structures submitted to accelerate test conditions over time (22-27 weeks). The physico-mechanical properties of concrete as measured by UPV, expansion and modulus of elasticity were significantly affected by ASR progression. These observations were confirmed by petrographic examination, which highlighted the presence of ASR crack filled with gel in aggregate particles and cement paste.

From the SIP data the two main parameters, magnitude or resistivity and phase lag versus frequency yielded different insights on the reactions taking place in concrete. SIP measurements at low frequencies [1.43 mHz-5.86 Hz] showed the evolution of phase lag and Σ_m, τ_{mean}

over time for the affected concrete samples by ASR compared to the non-affected mixtures. According to our results, ρ_0 could not be a significant parameter for discriminating ASR-affected from non-affected concretes. While ρ_0 strongly dependent on fluid chemistry, the increase in ρ_0 was observed for both mixtures (RC, NRC) saturated with the same solution (NaOH or water), it may be correlated with the change in matrix texture and the plugging of pores during the production of ASR gel and cement hydration (Loche et al., 2005; Sanchez et al., 2008; Cruz et al., 2013). As the results shown in our work, the accelerated reactive samples (RC-NaOH) displayed a positive correlation between total chargeability (Σm : from 1 % to 6 %) and expansion (from 0.1 % to 0.5 %) over a period of 22 weeks. The mean relaxation time (τ_{mean}) of RC-NaOH mixtures displayed also a quasi-linear increase from 2 % to 6.5 % for the same expansion levels. The reference mixtures saturated with the same solution (NRC-NaOH) showed a weak relationship between the SIP responses and expansion which were slightly developed from 0.5 % to 3 % for Σm , and showed a scattered increase of τ_{mean} from 0.8 % to 4% for the expansion levels from 0.05 % to 0.37 %. In the same way, NRC-NaOH mixtures displayed reduced modulus of elasticity and UPV which became similar to RC-NaOH between weeks 17 and 22.

Finally, the frequency dependence of the SIP method was validated as a tool for highlighting complex non-linear responses (electrochemical behaviour) in concrete microstructure. This highly precise of SIP measurements (phase lag, total chargeability, relaxation time) allowed detecting a significant difference in electrical properties (total chargeability, mean relaxation time) between the concrete samples non-affected and affected by ASR. In order to adapt the potential of SIP method for the actual concrete structures, other studies of the same kind are needed to estimate a factor of acceleration between accelerated conditions used in this paper and more natural conditions of reactive concrete submitted to variable saturation and temperature, concrete mixtures (aggregate, cement paste, adjuvants and additives).

Acknowledgements

The authors would like to thank Étienne Bélanger and Louis-Pierre Barrette from Polytechnique Montreal, and Danick Charbonneau and Ghyslaine Luc from Université de Sherbrooke (Québec, Canada). The project was supported by grants from the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) to Pr. Chouteau, from the Centre de Recherche sur les Infrastructures en Béton (CRIB), and the international internships of the Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies (FRQNT) to Pr. Rivard.

CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE

La méthode électrique est l'une des méthodes non destructives d'évaluation des dommages structurels et de l'état des structures en béton. Un certain nombre de recherches ont porté sur l'utilisation intensive des méthodes de résistivité et de surface dans l'industrie de la construction afin d'évaluer la corrosion des armatures (Hornbostel et al., 2013; Morris et al., 2002; Polder, 2001; Ramezani pour et al., 2011), pour détecter et étudier les fissures dans le béton (Lataste et al., 2003), pour estimer l'impact des agrégats grossiers (Hou et al., 2017) et de différents types de ciment sur la résistivité électrique du béton (Medeiros-Junior and Lima, 2016), ainsi que sur la corrélation entre la résistivité globale et la résistance superficielle (Azarsa and Gupta, 2017; Ghosh and Tran, 2015). Ces méthodes électriques à courant continu (DC) ne sont utilisées que pour déterminer la résistivité électrique selon la loi d'Ohm à une fréquence fixe ou dans une gamme de fréquences très limitée. En considérant que le béton est un matériau hautement hétérogène, il serait donc difficile de comprendre le comportement de sa microstructure complexe, et de distinguer les propriétés électriques de divers composants tels que la pâte de ciment hydratée, le squelette des agrégats, et la zone de transition interfaciale (ITZ). L'objectif de notre travail a porté sur la validation de la méthode de polarisation provoquée spectacle (PPS) comme méthode non-destructive capable de détecter la RAS avant l'apparition de fissures sur la structure de béton affecté. Comme on l'a déjà mentionné (voir problématique de thèse ; 1.1), la sensibilité de la PPS a déjà été validée au niveau de la caractérisation de la corrosion dans le béton et la fissuration, etc. (Sanchez et al., 2008; Castela et al., 2014; Cruz et al., 2013; Dong et al., 2014; Jasniok, 2013; Jolivet et al., 2007; Loche et al., 2005). Par contre la méthode n'a jamais fait l'objet d'études sur la réaction alcali-silice (RAS). Notre défi a été de suivre l'évolution électrochimique de la RAS dans la microstructure du béton liée aux échanges ioniques (double couche électrique ; couche de Stern) dont la réponse électrique peut apparaître plutôt à basse fréquence ($f < 100$ Hz).

Pour atteindre cet objectif, la première phase a porté sur une étude expérimentale approfondie pour garantir que notre système de mesure PPS produise une réponse précise et non-biaisée (voir chapitre 4 ; premier article), en particulier sur le paramètre de déphasage (calculé à partir de la partie imaginaire de la réponse, beaucoup plus faible que la partie réelle). Afin de caractériser plus précisément le comportement électrique complexe des matériaux (béton et mortier de ciment), les facteurs environnementaux (saturation, porosité, température, salinité de la solution) ont été maintenus constants tout en contrôlant et en atténuant les facteurs externes de notre système de mesure (couplages électromagnétiques et

capacitifs, câbles, impédances de contact des électrodes, géométrie, densité de courant, etc.). Dans ce travail, une configuration d'électrodes a été utilisée qui combine les avantages des deux méthodes de mesure présentées par Polder et al. (2000); Polder (2001) et Ghosh et Tran (2015), la méthode à quatre électrodes et la méthode à deux électrodes. Nous utilisons deux plaques aluminium-bronze à chaque extrémité de l'échantillon comme électrodes de courant, mais nous ne mesurons pas la tension entre elles; à la place, nous utilisons deux électrodes de réception positionnées entre les électrodes de courant à une certaine distance de chaque électrode. Zimmermann et al. (2008) ont montré que la séparation des électrodes de potentiel des électrodes de courant et leur positionnement à une distance optimale de celles-ci, permettaient de réduire les interférences dues à la polarisation des électrodes de courant et d'obtenir une densité de courant plus uniforme dans l'échantillon. Dans notre porte-échantillon, nous avons ajouté une paire supplémentaire d'électrodes de potentiel qui permet de mesurer simultanément deux parois opposées d'un échantillon de béton (hétérogène) afin de vérifier le degré d'isotropie de la réponse électrique complexe (voir chapitre 4).

Suite à la validation de notre système de mesure au laboratoire avec une précision de déphasage de 0.1 mrad pour une gamme de fréquences de 1.43 mHz à 20 kHz, une inversion par inférence bayésienne développée par Bérubé et al. (2017b) a été appliquée pour ajuster nos données PPS mesurées à celles produites par un modèle. Cette inversion a été réalisée afin d'obtenir les paramètres électriques caractéristiques du matériau, à savoir la résistivité DC, le temps de relaxation et la chargeabilité. Divers modèles mathématiques ont été proposés pour expliquer les réponses complexes mesurées Ghorbani A. et al. (2007). Parmi ceux-là, le modèle de Debye est simple puisqu'il se caractérise par un seul temps de relaxation. S'il existe plusieurs modes de relaxation, on peut alors voir la réponse comme la superposition (ou somme) de réponses de modes de relaxation simples (décomposition de Debye ou DD). Ce modèle est fiable afin de caractériser la réponse PPS où la polarisation est très faible (comme dans notre travail). La chargeabilité totale (Σ_m) et le temps de relaxation moyen (τ_{mean}) ont été calculés à partir de la distribution du temps de relaxation (RTD) obtenue par la méthode DD. La distribution de temps de relaxation est un paramètre important pour obtenir des informations sur la taille moyenne des grains ou celles des pores du matériau étudié (Nordsiek and Weller, 2008).

Selon notre modèle électrochimique conceptuel (Figure 5.13) basé sur les RTDs d'un mélange réactif, la chargeabilité a évolué au fil du temps (semaines 4 à 22) pour deux gammes de temps de relaxation. La première, observée pour $\tau > 102$ s, peut être associée à l'augmentation de la densité de charge (polarisation de la couche de Stern) à la surface des agrégats affectés par la RAS. La deuxième, définie par des temps de relaxation courts (10^{-5} s $< \tau < 10^{-2}$ s), correspond possiblement à la polarisation de membrane ou électrochimique de la matrice de

ciment causée par l'hydratation du ciment. Il convient de noter que si la taille de grain devient trop petite, la polarisation de la couche de Stern peut être dominée par la polarisation de Maxwell-Wagner (Revil and Florsch, 2010).

En considérant les résultats obtenus à partir de la mesure PPS et ceux du modèle de Debye, il y a aussi également un changement significatif des réponses de déphasage, de τ_{mean} et de Σ_m au cours du développement de la RAS. Selon Prezzi et al. (1997), la structure de la silice amorphe présente une surface spécifique élevée qui augmente la réactivité du gel en présence de la solution alcaline. En considérant nos résultats, il existe une relation directe entre la chargeabilité normalisée M_n et σ'' . Selon le modèle présenté par Revil et al. (2010), σ'' dépend de la surface spécifique (S_{por}) et de la conductivité de surface de la couche de Stern. Par conséquent, l'évolution de la surface spécifique du gel peut augmenter la conductivité de surface (capacité d'échange cationique) formée aux interfaces grain-électrolyte au cours du développement de l'ASR. Dans ce cas, les variations des deux paramètres Σ^s , S_{por} peuvent affecter l'évolution de σ'' dans la microstructure du béton affectée par la RAS. Contrairement aux réponses électriques discutées ci-dessus, ρ_0 ne montre aucun comportement remarquable lié au développement de la RAS dans les échantillons de béton affectés. Le comportement de ρ_0 pourrait correspondre à l'évolution de la conductivité électrique de la solution (eau, NaOH), de la porosité et de la tortuosité provoquées par l'hydratation et la solidification du ciment. Il faut noter que la conductivité de l'électrolyte a un impact négligeable sur la partie imaginaire de la conductivité (σ'') (Vinegar and Waxman, 1984).

Finalement, dans le but d'établir des critères de l'endommagement associés au développement de la RAS, une analyse plus quantitative des données auxiliaires a été faite par rapport aux corrélations possibles entre les réponses de résistivité complexe et d'autres propriétés physico-mécaniques, chimiques, et pétrographiques (module élasticité, résistance à la compression, expansion, variation de masse, vitesse d'impulsion ultrasonore, densité et porosité, DRI, SEM/EDS). Comme présenté au tableau 6.5 (chapitre 6 : troisième article), il y a une bonne corrélation entre le comportement électrique (Σ_m , τ_{mean}) du béton affecté par la RAS, et les signatures observées de certains essais au laboratoire, en particulier avec l'expansion, l'analyse DRI, le module d'élasticité et l'UPV.

Malgré la faible sensibilité de la résistance à la compression au développement de la RAS présentée par certains chercheurs (Fournier et al., 2010; Fujii et al., 1987; Marzouk and Langdon, 2003; Multon et al., 2005), dans notre travail les mélanges réactifs accélérés (RC-NaOH) ont montré une perte significative de la résistance à la compression pour une expansion supérieure à 0.2 % (semaine 6) (Figure 7.1). Dans ce cas, nos résultats sont très similaires à ceux présentés par Ahmed et al. (2003) (Figure 2.7). Néanmoins, aucun changement remar-

quable de cette propriété mécanique n'a été observé pour les autres mélanges (NRC-NaOH, RC-H₂O, NRC-H₂O).

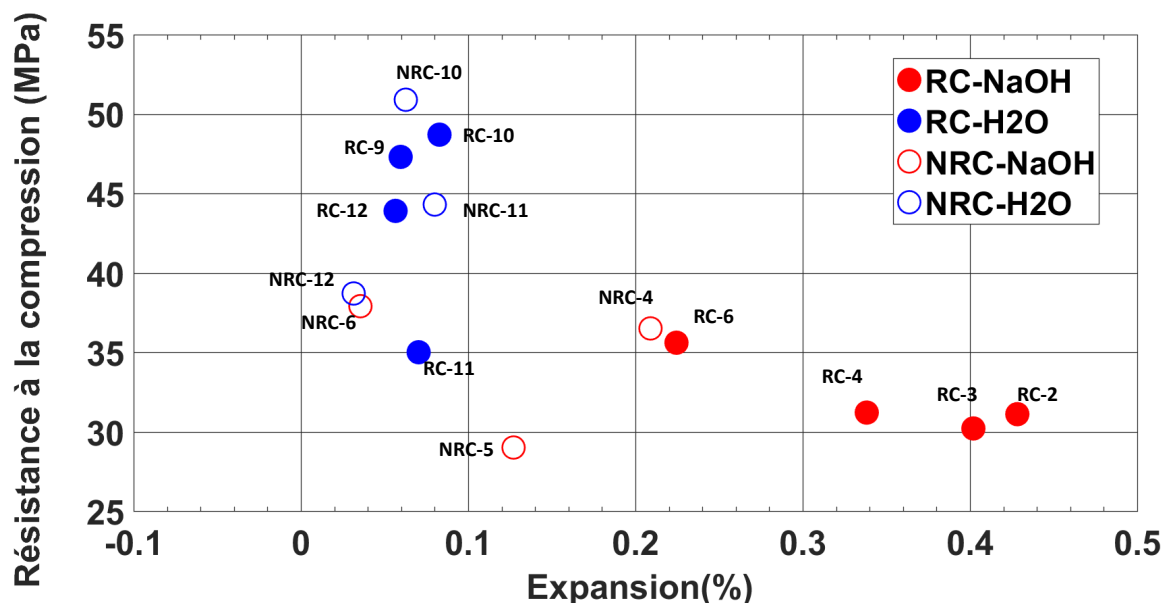


Figure 7.1 Corrélation entre la résistance à la compression et l'expansion pour les échantillons de béton réactifs (RC) et non réactifs (NRC). Comme la mesure ne peut être effectuée qu'une seule fois pour chaque échantillon, le numéro de l'échantillon sélectionné est indiqué.

Les échantillons de béton réactif accéléré (RC-NaOH) ont présenté une perte de masse significative des semaines 5 à 22, tandis que l'expansion a augmenté pendant cette même période. La perte de masse pourrait être causée par le lessivage du gel (RAS) à travers les microfissures de béton réactif immergé dans la solution de NaOH (Figure 6.5 b). Cette observation contraste avec les travaux de Boukari et al. (2015) et Multon et al. (2005) qu'ils ont présenté l'augmentation de la variation de masse du béton avec le développement de la RAS.

Même si les deux mélanges de béton (RC, NRC) ont été fabriqués avec une composition et des granulométries similaires (Tableau 6.5), les échantillons de RC-NaOH ont montré une porosité un peu plus élevée et une densité plus faible comparées aux mélanges non réactifs des semaines 6 à 22. Dans ce cas, la formation du gel ASR peut provoquer le développement de microfissures dans la structure du béton réactif (RC) au fil du temps. Par contre, il est à noter qu'aucune différence significative n'a été trouvée entre ces propriétés (densité, porosité) de chaque mélange (RC, NRC) en fonction de différentes solutions saturantes (NaOH, H₂O).

au fil du temps. En conséquence, ces paramètres physiques ne semblent pas être efficaces pour détecter le développement de la RAS. L'analyse chimique de la solution de conteneur a montré une augmentation de la concentration en Si, et SO₄ pour la solution NaOH des échantillons RC et NRC. En plus, on note une faible concentration en Ca pour la même solution au fil du temps ; ceci peut être dû à la formation de gel réactif riche en Ca au cours du développement de la RAS. Aucun changement significatif dans les concentrations en Al et K n'a pas été observé, ce qui est contraire à l'évolution de la chimie attendue du gel (RAS). La dissolution de SO₄ pourrait être due à une réaction chimique entre la pâte de ciment (gypse) en présence de la solution de NaOH à haute température (Ferraris, 1995). L'analyse de la solution contenant les échantillons ne nous a pas fourni d'informations suffisantes au niveau du développement de la RAS.

Concernant les analyses microscopiques (SEM/EDS), les données du spectre des rayons X n'indiquent aucun changement significatif lié à la RAS. Les cartes de rayons X (en anglais : X-ray map) ont montré la présence de Si, Na, Ca, Al, K dans les granulats altérés des mélanges de béton accélérés (RC-2-NaOH, NRC-3-NaOH). Les examens pétrographiques ont révélé une propagation de fissures remplies de gel dans les agrégats affectés par RAS et dans la pâte de ciment, avec également la présence d'auréoles foncées périphériques autour des granulats affectés. À ce sujet, l'examen DRI (en anglais : Damage Rating Index) pourrait valider de façon très fiable les réponses PPS (mean, m) et les autres propriétés physico-mécaniques (expansion, UPV, résistance à la compression, module d'élasticité) liées au développement de la RAS dans la microstructure du béton.

CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Le premier point important de notre travail est d'être parvenu à la mise en place d'un système de mesure PPS au laboratoire, qui permet de contrôler les facteurs externes affectant les réponses électriques (chapitre 4). Par la suite, dans la deuxième étape de cette thèse (chapitre 5), nous avons mesuré les réponses de polarisation provoquée spectrale au laboratoire sur des échantillons du béton réactif (RC) et témoins (NRC) en condition accélérées (60°C, plongés dans la solution ; H₂O, NaOH). Les mesures PPS ont été réalisées le système Fuchs III (Radic Research, Allemagne) et une configuration à quatre électrodes non polarisables pour la mesure de la différence de potentiel. À partir des réponses PPS, nous avons extrait les paramètres intégrants par décomposition de Debye (résistivité DC, chargeabilités et temps de relaxation) de chaque groupe d'échantillons (RC-NaOH, RC-H₂O, NRC-NaOH, NRC-H₂O).

La réponse en résistivité (ρ_0) montre des comportements qui dépendent de la salinité de l'eau interstitielle, et de la connectivité des grains (changement de texture de la matrice). Contrairement à la réponse ρ_0 qui n'a aucun rapport avec le développement de la RAS, les mesures PPS à basse fréquence [1,43 mHz - 5,86 Hz] ont montré une évolution en déphasage (φ), en chargeabilité (Σ_m) et en temps de relaxation (τ_{mean}) au fil du temps pour les échantillons de béton réactifs (RC-NaOH : semaines 4-22) et ceux de témoins accélérés (NRC-NaOH : semaines 17-22) par rapport aux mélanges non affectés (RC-H₂O, NRC-H₂O). À titre d'exemple, le mélange RC a augmenté rapidement d'environ 5 à 30 mrad entre les semaines 4 et 22, tandis que les mélanges NRC saturés avec la même solution (NaOH) ont présenté un déphasage de seulement 5 à 10 mrad entre les semaines 17 et 22. Il est à noter que dans ce travail, les échantillons non réactifs ont été utilisés comme mélanges témoins. Par contre les éprouvettes NRC-NaOH soumis à la condition accélérée (60°C) ont présentés une évolution remarquable de la RAS similaire à celle des mélanges RC-NaOH (réactive) de la semaine 17 à 22.

Il faut noter qu'une évolution du déphasage est aussi observée à des fréquences supérieures à 100 Hz, qui est attribuable à l'augmentation de la résistivité des échantillons de béton (RC, NRC) en fonction du temps. Cette observation peut être due à l'évolution de la contribution diélectrique (imaginaire) par rapport à la contribution galvanique (réelle) de la résistivité de l'échantillon (rapport $\omega\varepsilon/\sigma$).

Selon notre modèle conceptuel de RTD (Figure 5.13), le mélange réactif (RC-NaOH) a montré de manière significative une augmentation de pic la chargeabilité totale en fonction des temps de relaxation, qui est attribuée à la polarisation des agrégats pour $\tau > 10^2$ s. Cette observation peut-être due à l'évolution de cette réaction associée à la double couche électrique (couch

Stern) ou la production de gel à l'interface de granulat/solution interstitielle (ou ciment) au fil du temps. Dans la troisième phase de notre travail (chapitre 6), les réponses PPS (Σ_m , τ_{mean}) ont été confirmées à partir des différentes techniques de laboratoire, en particulier les essais non destructifs (expansion, vitesse de l'onde P ou UPV) et les essais destructifs (module d'élasticité, examen pétrographique).

En considérant les résultats physico-mécaniques, il existe une bonne corrélation entre la vitesse de l'onde P et l'expansion pour les échantillons RC-NaOH par rapport à celle des mélanges NRC-NaOH jusqu'à la semaine 12. Au cours des dernières semaines (17 et 22), le mélange NRC-NaOH a présenté un niveau d'expansion de 0.37% pour une diminution de l'UPV de 3%, tandis que le mélange RC-NaOH a montré une diminution de 6% pour un niveau d'expansion de 0.5%. L'analyse du module d'élasticité semblait plus sensible au développement de la RAS que la résistance à la compression. Cependant le mélange RC-NaOH a également montré une légère diminution de la résistance à la compression avec une expansion supérieure à 0.2%. Le temps de relaxation moyen (τ_{mean}) des mélanges RC-NaOH a présenté une augmentation quasi linéaire avec l'expansion sur une période de 22 semaines. Les échantillons RC-NaOH ont montré une corrélation forte et rapide entre la chargeabilité totale (Σ_m) et l'expansion pour la même période de suivi. Leur tendance est devenue plus élevée par rapport aux mélanges NRC-NaOH, qui ont présenté plus tard le même comportement que RC-NaOH des semaines 17 à 22. Toutes les réponses physico-mécaniques et électriques (PPS) étaient confirmées par l'analyse fiable pétrographique (DRI) qui a montré les microfissures causées par la RAS à travers les granulats réactifs et la pâte de ciment, ainsi que la présence d'auréoles sombres périphériques autour de granulat.

Ce travail est possiblement la première expérience réalisée pour déterminer le potentiel de la méthode PPS à caractériser l'endommagement du béton lié à la RAS. Afin de mieux comprendre les avantages et les limites d'application de PPS et ses modèles empiriques de l'inversion (ex. décomposition de Debye), d'autres travaux à l'avenir sont maintenant nécessaires pour les valider :

- Valider notre modèle conceptuel de RTD en utilisant différentes distributions granulométriques d'agrégats réactifs et en observant si la polarisation (chargeabilité) augmentent avec le temps pour les temps de relaxation associés à la taille des particules utilisée dans le mélange du béton.
- Des études expérimentales doivent approfondir les connaissances sur la mesure de l'impact de différents paramètres environnementaux et compositionnels sur les réponses PPS. À cet égard, les principaux paramètres sont la température, la solution porale, la teneur en eau, la granulométrie et les différents types de mélanges (agrégats, ciment,

adjuvant).

- À l'avenir, des tests supplémentaires seront nécessaires pour estimer la surface spécifique des grains (Spor), la capacité d'échange cationique, la concentration en produits de gel (ASR, C-S-H), les distributions granulométriques, et les porosités reliées au développement de la microstructure du béton par les réactions chimiques (ASR, hydratation du ciment).
- Notre protocole de mesure au laboratoire a utilisé les électrodes de potentiel non polarisable (Ag/AgCl ME100) qui sont déjà destinées dans l'industrie à la mesure de la corrosion causée par l'acier d'armature dans les structures en béton. À cet égard, le prochain défi pourra porter sur l'application PPS à caractériser les structures en béton armé dont le développement de la RAS est connu. Cette étape sera dans le but de valider les résultats de laboratoire.
- Bien qu'aucun travail dans la littérature n'ait encore abordé l'utilisation de cette méthode pour les structures en béton existantes, il serait bon de pouvoir procéder à la mesure PPS pour détecter les endommagements du béton causés par la corrosion des armatures en acier ou par la pyrite et la pyrrhotite dans l'industrie de la construction.

RÉFÉRENCES

- Aal, G. Z. A., Slater, L. D., and Atekwana, E. A. (2006). Induced-polarization measurements on unconsolidated sediments from a site of active hydrocarbon biodegradation. *GEOPHYSICS*, 71(2) :H13–H24.
- Abdulsamad, F., Florsch, N., Schmutz, M., and Camerlynck, C. (2016). Assessing the high frequency behavior of non-polarizable electrodes for spectral induced polarization measurements. *Journal of Applied Geophysics*, 135 :449–455.
- Ahmed, T., Burley, E., Rigden, S., and Abu-Tair, A. I. (2003). The effect of alkali reactivity on the mechanical properties of concrete. *Construction and Building Materials*, 17(2) :123–144.
- Archie, G. E. (1942). The Electrical Resistivity Log as an Aid in Determining Some Reservoir Characteristics. *Transactions of the AIME*, 146(01) :54–62.
- Attwa, M. and Günther, T. (2013). Spectral induced polarization measurements for predicting the hydraulic conductivity in sandy aquifers. *Hydrology and Earth System Sciences*, 17(10) :4079–4094.
- Azarsa, P. and Gupta, R. (2017). Electrical Resistivity of Concrete for Durability Evaluation : A Review.
- Bairlein, K., Hördt, A., and Nordsiek, S. (2014). The influence on sample preparation on spectral induced polarization of unconsolidated sediments. *Near Surface Geophysics*, 12(5) :667–677.
- Bangert, F., Kuhl, D., and Meschke, G. (2004). Chemo-hygro-mechanical modelling and numerical simulation of concrete deterioration caused by alkali-silica reaction. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 28(7-8) :689–714.
- Beyene, M., Snyder, A., Lee, R., and Blaszkiewicz, M. (2013). Alkali Silica Reaction (ASR) as a root cause of distress in a concrete made from Alkali Carbonate Reaction (ACR) potentially susceptible aggregates. *Cement and Concrete Research*, 51 :85–95.
- Binley, A., Slater, L. D., Fukes, M., and Cassiani, G. (2005). Relationship between spectral induced polarization and hydraulic properties of saturated and unsaturated sandstone. *Water Resources Research*, 41(12).
- Bleszynski, R. F. and Thomas, M. D. A. (1998). Microstructural Studies of Alkali-Silica Reaction in Fly Ash Concrete Immersed in Alkaline Solutions. *Advanced Cement Based Materials*, 7(2) :66–78.

- Boukari, Y., Bulteel, D., Rivard, P., and Abriak, N.-E. (2015). Combining nonlinear acoustics and physico-chemical analysis of aggregates to improve alkali-silica reaction monitoring. *Cement and Concrete Research*, 67 :44–51.
- Boukari, Y., Rivard, P., Bulteel, D., and Abriak, N.-E. (2010). Mutli-scale diagnosis of concrete damage caused by alkali-silica reaction. In *2nd International Symposium on Service Life Design for Infrastructures*, pages 221–228. RILEM Publications SARL.
- Brough, A. R., Dobson, C. M., Richardson, I. G., and Groves, G. W. (1996). Alkali activation of reactive silicas in cements : in situ ^{29}Si MAS NMR studies of the kinetics of silicate polymerization. *Journal of Materials Science*, 31(13) :3365–3373.
- Brouxel, M. (1993). The alkali-aggregate reaction rim : Na_2O , SiO_2 , K_2O and CaO chemical distribution. *Cement and Concrete Research*, 23(2) :309–320.
- Bulteel, D., Garcia-Diaz, E., Vernet, C., and Zanni, H. (2002). Alkali-silica reaction : A method to quantify the reaction degree. *Cement and Concrete Research*, 32(8) :1199–1206.
- Bérubé, C., Chouteau, M., Olivo, G., Perrouy, S., Shamsipour, P., and Enkin, R. (2017a). Spectral induced polarization signatures of altered metasedimentary rocks of the Canadian Malartic gold deposit Bravo zone, Québec, Canada. pages 204–208.
- Bérubé, C. L., Chouteau, M., Shamsipour, P., Enkin, R. J., and Olivo, G. R. (2017b). Bayesian inference of spectral induced polarization parameters for laboratory complex resistivity measurements of rocks and soils. *Computers & Geosciences*, 105 :51–64.
- Cabeza, M., Merino, P., Miranda, A., Nóvoa, X. R., and Sanchez, I. (2002). Impedance spectroscopy study of hardened Portland cement paste. *Cement and Concrete Research*, 32(6) :881–891.
- Castela, A. S., da Fonseca, B. S., Duarte, R. G., Neves, R., and Montemor, M. F. (2014). Influence of Unsupported Concrete Media in Corrosion Assessment for Steel Reinforcing Concrete by Electrochemical Impedance Spectroscopy. *Electrochimica Acta*, 124 :52–60.
- Chana, P. S. and Thompson, D. M. (1992). Laboratory Testing and Assessment of Structural Members Affected by Alkali-silica Reaction. volume 1, london.
- Chatterji, S. (2005). Chemistry of alkali-silica reaction and testing of aggregates. *Cement and Concrete Composites*, 27 :788–795.
- Chen, Y. and Or, D. (2006). Effects of Maxwell-Wagner polarization on soil complex dielectric permittivity under variable temperature and electrical conductivity. *Water Resources Research*, 42(6).
- Christensen, B. J., Coverdale, T., Olson, R. A., Ford, S. J., Garboczi, E. J., Jennings, H. M., and Mason, T. O. (1994). Impedance Spectroscopy of Hydrating Cement-Based Materials :

- Measurement, Interpretation, and Application. *Journal of the American Ceramic Society*, 77(11) :2789–2804.
- Comi, C., Monteiro, P., and Pignatelli, R. (2014). chemical and mechanical damage in concrete due to swelling of alkali-silica gel. pages 503–514.
- Cong, X.-D., Kirkpatrick, R. J., and Diamond, S. (1993). ^{29}Si MAS NMR spectroscopic investigation of alkali silica reaction product gels. *Cement and Concrete Research*, 23(4) :811–823.
- Cruz, J., Fita, I., Soriano, L., Payá, J., and Borrachero, M. (2013). The use of electrical impedance spectroscopy for monitoring the hydration products of Portland cement mortars with high percentage of pozzolans. *Cement and Concrete Research*, 50 :51–61.
- Dahlin, T., Leroux, V., and Nissen, J. (2002). Measuring techniques in induced polarisation imaging. *Journal of Applied Geophysics*, 50(3) :279–298.
- Deloye, F.-X. and Divet, L. (1992). The alkali-aggregate reaction quantitative aspects. volume 1, london.
- Deus, J. M., Díaz, B., Freire, L., and Nóvoa, X. R. (2014). The electrochemical behaviour of steel rebars in concrete : an Electrochemical Impedance Spectroscopy study of the effect of temperature. *Electrochimica Acta*, 131 :106–115.
- Diamond, S. (2000). Mercury porosimetry : An inappropriate method for the measurement of pore size distributions in cement-based materials. *Cement and Concrete Research*, 30(10) :1517–1525.
- Dong, B., Qiu, Q., Xiang, J., Huang, C., Xing, F., and Han, N. (2014). Study on the Carbonation Behavior of Cement Mortar by Electrochemical Impedance Spectroscopy. *Materials*, 7(1) :218–231.
- E. Grattan-Bellew, P. and Danay, A. (2010). Comparison of laboratory and field evaluation of alkali- silica reaction in large dams.
- Fernandes, I., Noronha, F., and Teles, M. (2007). Examination of the concrete from an old Portuguese dam : Texture and composition of alkali-silica gel. *Materials Characterization - MATER CHARACTER*, 58 :1160–1170.
- Ferraris, C. F. (1995). Alkali-Silica Reaction and High Performance Concrete. *NIST Inter-agency/Internal Report (NISTIR) - 5742*.
- Ford, S. J., Mason, T. O., Christensen, B. J., Coverdale, R. T., Jennings, H. M., and Garboczi, E. J. (1995). Electrode configurations and impedance spectra of cement pastes. *Journal of Materials Science*, 30(5) :1217–1224.

- Fournier, B., editor (2006). *Marc-André Bérubé symposium on alkali-aggregate reactivity in concrete : proceedings of a symposium honoring professor Marc-André Bérubé = Colloque Marc-André Bérubé sur la réactions alcalis-granulats dans le béton : compte-rendus d'un colloque en l'honneur de professeur Marc-André Bérubé*. Marquis, [Québec. OCLC : 72817680.
- Fournier, B., Berube, M.-A., Folliard, K. J., and Thomas, M. (2010). Report on the Diagnosis, Prognosis, and Mitigation of Alkali-Silica Reaction (ASR) in Transportation Structures.
- Fournier, B. and Bérubé, M. (2011). Alkali-aggregate reaction in concrete : A review of basic concepts and engineering implications. *Canadian Journal of Civil Engineering*, 27 :167–191.
- Fournier, B. and Bérubé, M.-A. (2000). Alkali-aggregate reaction in concrete : a review of basic concepts and engineering implications. *Canadian Journal of Civil Engineering*, 27(2) :167–191.
- Frybort, A., Vsiansky, D., Stulirova, J., Stryk, J., and Gregerova, M. (2018). Variations in the composition and relations between alkali-silica gels and calcium silicate hydrates in highway concrete. *Materials Characterization*, 137 :91–108.
- Fujii, M., Kobayashi, K., Kojima, T., and Maehara, H. (1987). The static and dynamic behaviour of reinforced concrete beams with cracking due to alkali-silica reaction –proceedings of the 7th international conference on concrete alkali-aggregate reactions, ottawa, canada, 1986. *Noyes publications*.
- Garcia-Diaz, E., Riche, J., Bulteel, D., and Vernet, C. (2006). Mechanism of damage for the alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 36(2) :395–400.
- Ghanem, H., Zollinger, D., Lytton, R., and Ghanem, N. (2012). Development of a reaction signature for combined concrete materials factors. *Construction and Building Materials*, 35 :923–930.
- Ghorbani A., Camerlynck C., Florsch N., Cosenza P., and Revil A. (2007). Bayesian inference of the Cole-Cole parameters from time- and frequency-domain induced polarization. *Geophysical Prospecting*, 55(4) :589–605.
- Ghosh, P. and Tran, Q. (2015). Correlation Between Bulk and Surface Resistivity of Concrete. *International Journal of Concrete Structures and Materials*, 9(1) :119–132.
- Grattan-Bellew, P. and Chan, G. (2013). Comparison of the morphology of alkali-silica gel formed in limestones in concrete affected by the so-called alkali-carbonate reaction (ACR) and alkali-silica reaction (ASR). *Cement and Concrete Research*, 47 :51–54.
- Grattan-Bellew, P. E. (1995). Laboratory Evaluation of Alkali-Silica Reaction in Concrete from Saunders Generating Station. *Materials Journal*, 92(2) :126–134.

- Gurin, G., Tarasov, A., Ilyin, Y., and Titov, K. (2013). Time domain spectral induced polarization of disseminated electronic conductors : Laboratory data analysis through the Debye decomposition approach. *Journal of Applied Geophysics*, 98 :44–53.
- Gurin, G., Titov, K., Ilyin, Y., and Tarasov, A. (2015). Induced polarization of disseminated electronically conductive minerals : a semi-empirical model. *Geophysical Journal International*, 200(3) :1555–1565.
- Haha, M. B., Gallucci, E., Guidoum, A., and Scrivener, K. (2007). Relation of expansion due to alkali silica reaction to the degree of reaction measured by SEM image analysis. *Cement and Concrete Research*, 37 :1206–1214.
- Hench, L. L. and Clark, D. E. (1978). Physical chemistry of glass surfaces. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 28(1) :83–105.
- Hornbostel, K., Larsen, C. K., and Geiker, M. R. (2013). Relationship between concrete resistivity and corrosion rate – A literature review. *Cement and Concrete Composites*, 39 :60–72.
- Hou, T.-C., Nguyen, V. K., Su, Y.-M., Chen, Y.-R., and Chen, P.-J. (2017). Effects of coarse aggregates on the electrical resistivity of Portland cement concrete. *Construction and Building Materials*, 133 :397–408.
- Hou, X., Struble, L. J., and Kirkpatrick, R. J. (2004). Formation of ASR gel and the roles of C-S-H and portlandite. *Cement and Concrete Research*, 34(9) :1683–1696.
- Ichikawa, T. and Miura, M. (2007). Modified model of alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 37 :1291–1297.
- Jasniok, M. (2013). Investigation and Modelling of the Impact of Reinforcement Diameter in Concrete on Shapes of Impedance Spectra. *Procedia Engineering*, 57 :456–465.
- Jolivet, D., Bonen, D. M., and Shah, S. P. (2007). The corrosion resistance of coated steel dowels determined by impedance spectroscopy. *Cement and Concrete Research*, 37(7) :1134–1143.
- Jones, A. E. K. and Clark, L. A. (1996). The effects of restraint on ASR expansion of reinforced concrete. *Magazine of Concrete Research*, 48(174) :1–13.
- Karhunen, K., Seppänen, A., Lehtikainen, A., Monteiro, P. J. M., and Kaipio, J. P. (2010). Electrical Resistance Tomography imaging of concrete. *Cement and Concrete Research*, 40(1) :137–145.
- Khajehnouri, Y., Chouteau, M., Rivard, P., and Bérubé, C. L. (2019). Measuring electrical properties of mortar and concrete samples using the spectral induced polarization method : laboratory set-up. *Construction and Building Materials*, 210 :1–12.

- Koch, K., Kemna, A., Irving, J., and Holliger, K. (2010). Impact of controlled changes in grain size and pore space characteristics on the hydraulic conductivity and spectral induced polarization response of. *Hydrology and Earth System Sciences Discussions*, 7 :6057–6080.
- Koch, K., Kemna, A., Irving, J., and Holliger, K. (2011). Impact of changes in grain size and pore space on the hydraulic conductivity and spectral induced polarization response of sand. *Hydrology and Earth System Sciences - HYDROL EARTH SYST SCI*, 15 :1785–1794.
- Lamond, J. F. and Pielert, J. H. (2006). *Significance of Tests and Properties of Concrete and Concrete-making Materials*. ASTM International. Google-Books-ID : isTMHD6yIy8C.
- Larive, C. (1997). *Apports combinés de l'expérimentation et de la modélisation à la compréhension de l'alcali-réaction et de ses effets mécaniques*. phdthesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.
- Lataste, J. F., Sirieix, C., Breysse, D., and Frappa, M. (2003). Electrical resistivity measurement applied to cracking assessment on reinforced concrete structures in civil engineering. *NDT & E International*, 36(6) :383–394.
- Leroy, P., Revil, A., Kemna, A., Cosenza, P., and Ghorbani, A. (2008). Complex conductivity of water-saturated packs of glass beads. *Journal of Colloid and Interface Science*, 321(1) :103–117.
- Lesmes, D. and Morgan, F. (2001). Dielectric spectroscopy of sedimentary rocks. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 106(B7) :13329–13346.
- Lesmes David P. and Frye Kevin M. (2001). Influence of pore fluid chemistry on the complex conductivity and induced polarization responses of Berea sandstone. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 106(B3) :4079–4090.
- Lesnicki, K. J., Kim, J.-Y., Kurtis, K. E., and Jacobs, L. J. (2013). Assessment of alkali-silica reaction damage through quantification of concrete nonlinearity. *Materials and Structures*, 46(3) :497–509.
- Lindgard, J., Andic-Cakir, O., Fernandes, I., Ronning, T. F., and Thomas, M. D. A. (2012). Alkali-silica reactions (ASR) : Literature review on parameters influencing laboratory performance testing. *Cement and Concrete Research*, 42(2) :223–243.
- Liu, F., Gardner, L., and Yang, H. (2014). Post-fire behaviour of reinforced concrete stub columns confined by circular steel tubes. *Journal of Constructional Steel Research*, 102 :82–103.
- Loche, J. M., Ammar, A., and Dumargue, P. (2005). Influence of the migration of chloride ions on the electrochemical impedance spectroscopy of mortar paste. *Cement and Concrete Research*, 35(9) :1797–1803.

- Lorenzi, A., Tisbierck, F. T., and Silva, L. C. P. (2007). Ultrasonic pulse velocity analysis in concrete specimens. In *IV Conferencia Panamericana de END, Buenos Aires*.
- Malhotra, V. M., Carino, N. J., and Carino, N. J. (2003). *Handbook on Nondestructive Testing of Concrete*. CRC Press.
- Marzouk, H. and Langdon, S. (2003). The effect of alkali-aggregate reactivity on the mechanical properties of high and normal strength concrete. *Cement and Concrete Composites*, 25(4) :549–556.
- Medeiros-Junior, R. A. and Lima, M. G. (2016). Electrical resistivity of unsaturated concrete using different types of cement. *Construction and Building Materials*, 107 :11–16.
- Mindess, S., Young, J. F., and Darwin, D. (2003). *Concrete*. Prentice Hall, Upper Saddle River, NJ, 2nd ed edition. OCLC : ocm49679897.
- Mohammed, T., Hamada, H., Yamaji, T., and Yokota, H. (2004). ASR Expansion of Concrete Beams with Various Restrained Conditions – Results till 612 Days of Exposure.
- Mohazzab, P. (2017). Archimedes’ Principle Revisited. *Journal of Applied Mathematics and Physics*, 05(04) :836–843.
- Monnin, Y. (2005). *Méthodologie pour décrire le gonflement multi-échelle de calcaires siliceux soumis à la réaction alcali-silice dans le matériau béton*. phdthesis, Université d’Artois.
- Monnin, Y., Dégrugilliers, P., Bulteel, D., and Garcia-Diaz, E. (2006). Petrography study of two siliceous limestones submitted to alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 36(8) :1460–1466.
- Morris, W., Vico, A., Vazquez, M., and de Sanchez, S. R. (2002). Corrosion of reinforcing steel evaluated by means of concrete resistivity measurements. *Corrosion Science*, 44(1) :81–99.
- Moundoungou, I., Bulteel, D., Garcia-Diaz, E., Thiéry, V., Dégrugilliers, P., and Hammerschlag, J. (2014). Reduction of ASR expansion in concretes based on reactive chert aggregates : Effect of alkali neutralisation capacity. *Construction and Building Materials*, 54 :147–162.
- Multon, S., Seignol, J.-F., and Toutlemonde, F. (2005). Structural behavior of concrete beams affected by alkali-silica reaction. *ACI Materials Journal*, 102(2).
- Natesaiyer, K. (1993). Some applications of the gel fluorescence test for alkali-aggregate reaction in concrete. *Cement and Concrete Composites*, 15(1) :3–6.
- Natesaiyer, K. C. and Hover, K. C. (1989). Further study of an in-situ identification method for alkali-silica reaction products in concrete. *Cement and Concrete Research*, 19(5) :770–778.

- Nordsiek, S. and Weller, A. (2008). A new approach to fitting induced-polarization spectra. *GEOPHYSICS*, 73(6) :F235–F245.
- Okay Ahi, G. (2011). *Caractérisation des hétérogénéités texturales et hydriques des géomatériaux argileux par la méthode de Polarisation Provoquée : Application à l'EDZ de la station expérimentale de Tournemire*. PhD thesis, L'université pierre et marie curie, Paris 6.
- Panzer, T. H., Christoforo, A. L., Cota, F. P., Borges, P. H. R., and Bowen, C. R. (2004). Ultrasonic Pulse Velocity Evaluation of Cementitious Materials. *Advances in Composite Materials*, page 27.
- Pelton, W. H., Ward, S. H., Hallof, P. G., Sill, W. R., and Nelson, P. H. (1978). MINERAL DISCRIMINATION AND REMOVAL OF INDUCTIVE COUPLING WITH MULTIFREQUENCY IP. *GEOPHYSICS*, 43(3) :588–609.
- Perron, S. and Beaudoin, J. J. (2002). Freezing of water in portland cement paste – an ac impedance spectroscopy study. *Cement and Concrete Composites*, 24(5) :467–475.
- Placencia-Gómez, E., Slater, L., Ntarlagiannis, D., and Binley, A. (2013). Laboratory SIP signatures associated with oxidation of disseminated metal sulfides. *Journal of Contaminant Hydrology*, 148 :25–38.
- Polder, R., Andrade, C., Elsener, B., Vennesland, , Gulikers, J., Weidert, R., and Raupach, M. (2000). Test methods for on site measurement of resistivity of concrete. *Materials and Structures*, 33(10) :603–611.
- Polder, R. B. (2001). Test methods for on site measurement of resistivity of concrete — a RILEM TC-154 technical recommendation. *Construction and Building Materials*, 15(2) :125–131.
- Pour-Ghaz, M. and Weiss, J. (2011). Detecting the time and location of cracks using electrically conductive surfaces. *Cement and Concrete Composites*, 33(1) :116–123.
- Powers, T. C. and Steinour, H. H. (1955). An Interpretation of Some Published Researches on the Alkali-Aggregate Reaction Part 2 - A Hypothesis Concerning Safe and Unsafe Reactions with Reactive Silica in Concrete. *Journal Proceedings*, 51(4) :785–812.
- Prezzi, M., Monteiro, P. J. M., and Sposito, G. (1997). Alkali-Silica Reaction, Part I : Use of the Double-Layer Theory to Explain the Behavior of Reaction-Product Gels. *Materials Journal*, 94(1) :10–17.
- Ramezani-pour, A. A., Pilvar, A., Mahdikhani, M., and Moodi, F. (2011). Practical evaluation of relationship between concrete resistivity, water penetration, rapid chloride penetration and compressive strength. *Construction and Building Materials*, 25(5) :2472–2479.

- Revil, A. (1999). Ionic Diffusivity, Electrical Conductivity, Membrane and Thermoelectric Potentials in Colloids and Granular Porous Media : A Unified Model. *Journal of Colloid and Interface Science*, 212(2) :503–522.
- Revil, A. (2013). On charge accumulation in heterogeneous porous rocks under the influence of an external electric field. *GEOPHYSICS*, 78(4) :D271–D291.
- Revil, A., Abdel Aal, G., Atekwana, E., Mao, D., and Florsch, N. (2016a). Induced polarization response of porous media with metallic particles — Part 2. Comparison with a broad database of experimental data. *GEOPHYSICS*, 80.
- Revil, A., Coperey, A., Shao, Z., Florsch, N., Fabricius, I., Deng, Y., Delsman, J., Pauw, P., Karaoulis, M., Louw, P., van Baaren, E., Dabekaussen, W., Menkovic, A., and Gunnink, J. (2017). Complex conductivity of soils. *Water Resources Research*, 53.
- Revil, A. and Florsch, N. (2010). Determination of permeability from spectral induced polarization in granular media. *Geophysical Journal International*.
- Revil, A., Florsch, N., and Camerlynck, C. (2014). Spectral induced polarization porosimetry. *Geophysical Journal International*, 198(2) :1016–1033.
- Revil, A., Florsch, N., and Mao, D. (2015). Induced polarization response of porous media with metallic particles — Part 1 : A theory for disseminated semiconductors. *GEOPHYSICS*, 80(5) :D525–D538.
- Revil, A., Koch, K., and Holliger, K. (2012). Is it the grain size or the characteristic pore size that controls the induced polarization relaxation time of clean sands and sandstones? *Water Resources Research*, 48(5).
- Revil, A., Mao, D., Shao, Z., Sleevi, M., and Wang, D. (2016b). Induced polarization response of porous media with metallic particles - part 6 : The case of metals and semimetals. 82 :E97–E110.
- Revil, A. and Skold, M. (2011). Salinity dependence of spectral induced polarization in sands and sandstones. *Geophysical Journal International*, 187(2) :813–824.
- Revil, A., Skold, M., Hubbard, S., Wu, Y., Watson, D., and Karaoulis, M. (2013). Petrophysical properties of saprolites from the Oak Ridge Integrated Field Research Challenge site, Tennessee. *Geophysics*, 78 :D21–D40.
- Reynolds, J. M. (2011). *An Introduction to Applied and Environmental Geophysics*. John Wiley & Sons, Ltd., UK.
- Ribeiro, D. V. and Abrantes, J. C. C. (2016). Application of electrochemical impedance spectroscopy (EIS) to monitor the corrosion of reinforced concrete : A new approach. *Construction and Building Materials*, 111 :98–104.

- Ribeiro, D. V., Souza, C. a. C., and Abrantes, J. C. C. (2015). Use of Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS) to monitoring the corrosion of reinforced concrete. *Revista IBRACON de Estruturas e Materiais*, 8(4) :529–546.
- Rivard, P., Fournier, B., and Ballivy, G. (2002). The damage rating index method for ASR affected concrete. *A Critical Review of Petrographic Features of Deterioration and Evaluation Criteria Cement Concrete and Aggregates*, 24.
- Rivard, P. and Saint-Pierre, F. (2009). Assessing alkali-silica reaction damage to concrete with non-destructive methods : From the lab to the field. *Construction and Building Materials*, 23(2) :902–909.
- Rodrigues, F. A., Monteiro, P. J. M., and Sposito, G. (1999). The alkali-silica reaction : The surface charge density of silica and its effect on expansive pressure. *Cement and Concrete Research*, 29(4) :527–530.
- Saint-Pierre, F., Rivard, P., and Ballivy, G. (2007). Measurement of alkali-silica reaction progression by ultrasonic waves attenuation. *Cement and Concrete Research*, 37 :948–956.
- Sanchez, I., Nóvoa, X. R., de Vera, G., and Climent, M. A. (2008). Microstructural modifications in Portland cement concrete due to forced ionic migration tests. Study by impedance spectroscopy. *Cement and Concrete Research*, 38(7) :1015–1025.
- Sanchez, L. F. M., Fournier, B., Jolin, M., and Duchesne, J. (2015). Reliable quantification of AAR damage through assessment of the Damage Rating Index (DRI). *Cement and Concrete Research*, 67 :74–92.
- Saouma, V. E., Martin, R. A., Hariri-Ardebili, M. A., and Katayama, T. (2015a). A mathematical model for the kinetics of the alkali-silica chemical reaction. *Cement and Concrete Research*, 68 :184–195.
- Saouma, V. E., Martin, R. A., Hariri-Ardebili, M. A., and Katayama, T. (2015b). A mathematical model for the kinetics of the alkali-silica chemical reaction. *Cement and Concrete Research*, 68 :184–195.
- Schmutz, M., Ghorbani, A., Vaudelet, P., and Blondel, A. (2014). Cable arrangement to reduce electromagnetic coupling effects in spectral-induced polarization studies. *Geophysics*, 79(2) :A1–A5.
- Sims, I. and Poole, A. B. (2017). *Alkali-Aggregate Reaction in Concrete : A World Review*. CRC Press. Google-Books-ID : JwMvDwAAQBAJ.
- Slater, L. and Lesmes, D. P. (2002). Electrical-hydraulic relationships observed for unconsolidated sediments. *Water Resources Research*, 38(10) :31–1–31–13.

- Smaoui, N., Bérubé, M.-A., Fournier, B., Bissonnette, B., and Durand, B. (2004). Evaluation of the expansion attained to date by concrete affected by alkali-silica reaction. Part I : Experimental study. *Canadian Journal of Civil Engineering*, 31(5) :826–845.
- Song, G. (2000). Equivalent circuit model for AC electrochemical impedance spectroscopy of concrete. *Cement and Concrete Research*, 30(11) :1723–1730.
- Steffens, A., Li, K., and Coussy, O. (2003). Aging Approach to Water Effect on Alkali-Silica Reaction Degradation of Structures. *Journal of Engineering Mechanics-asce - J ENG MECH-ASCE*, 129.
- Sumner, J. S. (1976). *Principles of induced polarization for geophysical exploration*. Elsevier Scientific. Google-Books-ID : ty58AAAAIAAJ.
- Sun, H., Ren, Z., Memon, S. A., Zhao, D., Zhang, X., Li, D., and Xing, F. (2017). Investigating drying behavior of cement mortar through electrochemical impedance spectroscopy analysis. *Construction and Building Materials*, 135 :361–368.
- Swamy, R. N. (1991). *The Alkali-Silica Reaction in Concrete*. Taylor & Francis.
- Swamy, R. N. (2002). *The Alkali-Silica Reaction in Concrete*. CRC Press.
- Swamy, R. N. and Al-Asali, M. M. (1988). Engineering Properties of Concrete Affected by Alkali-Silica Reaction. *Materials Journal*, 85(5) :367–374.
- Syropoulou, S. and Buenfeld, N. R. (2005). Characterisation of surface treatments on concrete by AC impedance spectroscopy. *Surface Coatings International Part B : Coatings Transactions*, 88(1) :61–66.
- Sánchez, M., Gregori, J., Alonso, C., García-Jareño, J. J., Takenouti, H., and Vicente, F. (2007). Electrochemical impedance spectroscopy for studying passive layers on steel rebars immersed in alkaline solutions simulating concrete pores. *Electrochimica Acta*, 52(27) :7634–7641.
- Thomas, M., Fournier, B., and Folliard, K. (2013). *Alkali-Aggregate Reactivity (AAR) Facts Book*. Number FHWA-HIF-13-019. U.S. Department of Transportation, Federal Highway Administration, Washington, DC.
- Thomas, M. D. A. (2013). *Methods for Evaluating and Treating ASR-Affected Structures : Results of Field Application and Demonstration Projects : Final Report*. U.S. Department of Transportation, Federal Highway Administration, Washington, DC.
- Thomas, M. D. A., Fournier, B., Folliard, K. J., and Resendez, Y. A. (2011). *Alkali-Silica Reactivity Field Identification Handbook*.
- Titov, K., Tarasov, A., Ilyin, Y., Seleznev, N., and Boyd, A. (2010). Relationships between induced polarization relaxation time and hydraulic properties of sandstone. *Geophysical Journal International*, 180(3) :1095–1106.

- Turanli, L., Bektas, F., and Monteiro, P. (2003). Use of ground clay brick as a pozzolanic material to reduce the alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 33 :1539–1542.
- Urhan, S. (1987). Alkali silica and pozzolanic reactions in concrete. Part 1 : Interpretation of published results and an hypothesis concerning the mechanism. *Cement and Concrete Research*, 17(1) :141–152.
- Vanhala, H. and Soininen, H. (1995). Laboratory technique for measurement of spectral induced polarization response of soil samples. *Geophysical Prospecting*, 43(5) :655–676.
- Vinegar, H. J. and Waxman, M. H. (1984). Induced polarization of shaly sands. *GEOPHYSICS*, 49(8) :1267–1287.
- Wang, H. and Gillott, J. E. (1991). Mechanism of alkali-silica reaction and the significance of calcium hydroxide. *Cement and Concrete Research*, 21(4) :647–654.
- Weller, A., Slater, L., and Nordsiek, S. (2013). On the relationship between induced polarization and surface conductivity : Implications for petrophysical interpretation of electrical measurements. *GEOPHYSICS*, 78(5) :D315–D325.
- Winter, N. B. (2012). *Understanding Cement*.
- Yu, B., Liu, J., and Chen, Z. (2017). Probabilistic evaluation method for corrosion risk of steel reinforcement based on concrete resistivity. *Construction and Building Materials*, 138 :101–113.
- Zheng, K., Lukovic, M., De Schutter, G., Ye, G., and Taerwe, L. (2016). Elastic Modulus of the Alkali-Silica Reaction Rim in a Simplified Calcium-Alkali-Silicate System Determined by Nano-Indentation. *Materials*, 9(9).
- Zimmermann, E., Kemna, A., Berwix, J., Glaas, W., Münch, H. M., and Huisman, J. A. (2008). A high-accuracy impedance spectrometer for measuring sediments with low polarizability. *Measurement Science and Technology*, 19(10) :105603.
- Zisser, N., Kemna, A., and Nover, G. (2010). Dependence of spectral-induced polarization response of sandstone on temperature and its relevance to permeability estimation. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 115(B9).

ANNEXE A Mesures de densité et de porosité

Dans notre travail, la densité et la porosité des échantillons de béton (RC, NRC) ont été estimées selon le principe d'Archimède Mohazzab (2017) (voir chapitre 6). Les échantillons saturés sont d'abord pesés dans l'air secs (masse saturée; M_{sat}). Par la suite, on détermine la masse apparente des échantillons saturés plongés dans l'eau (M_{sub}). Puis, les échantillons sont laissés pendant 48 heure dans le four de 60°C afin d'obtenir la mass sèche ($M_{sèche}$). À partir de ces 3 mesures (M_{sat} , M_{sub} , et $M_{sèche}$), on peut déterminer les densités sèche $\rho_{sèche}$ et saturée ρ_{sat} , la densité de la matrice ρ_g (ou du grain) et les porosités ouvertes des échantillons ϕ_{ouvert} (selon la méthode d'Archimède) :

$$\rho_{sat} = \frac{M_{sat}}{V_b} = \rho_w \times \frac{M_{sat}}{M_{sat} - M_{sub}}, \quad (\text{A.1})$$

$$\rho_{sèche} = \frac{M_{sèche}}{V_b} = \rho_w \times \frac{M_{sèche}}{M_{sat} - M_{sub}}, \quad (\text{A.2})$$

$$\rho_g = \frac{M_{sèche}}{V_b} = \rho_w \times \frac{M_{sèche}}{M_{sèche} - M_{sub}}, \quad (\text{A.3})$$

$$V_m = V_b - V_p = \left(\frac{M_{sat} - M_{sub}}{\rho_w} \right) - \left(\frac{M_{sat} - M_{sèche}}{\rho_w} \right) \quad (\text{A.4})$$

$$\phi_{ouvert} = \frac{V_p}{V_b} \times 100 \quad (\text{A.5})$$

Où V_b : volume de l'échantillon (ou en anglais; bulk volume), V_p : volume des pores, ρ_w : densité de l'eau, V_m : volume de la matrice (volume de grain).

ANNEXE B MÉTHODE ACOUSTIQUE LINÉAIRE

Dans le but d'estimer la qualité de nombreux matériaux de construction, la méthode UPV (Ultrasonic Pulse Velocity) est utilisée afin de surveiller la densité et l'homogénéité de la matière en fournissant des informations sur l'évolution de l'existence et de l'étendue de défauts internes et les détériorations du béton (Lorenzi et al., 2007). Cette méthode est basée sur la propagation d'une onde ultrasonore de haute fréquence ($\geq 50\text{kHz}$) qui passe au travers du matériau. Trois types de mesures sont alors possibles : le couplage direct (le plus sensible), le couplage indirect (le moins sensible) et le couplage semi-direct (Figure B.1).

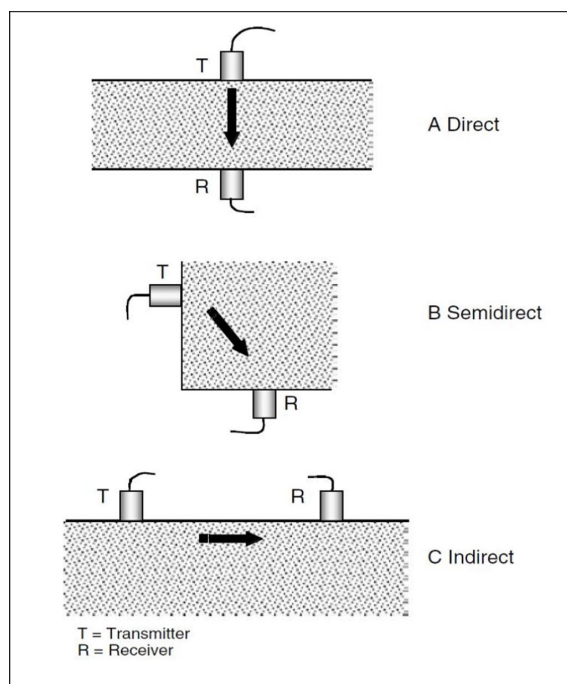


Figure B.1 Configuration des capteurs de test UPV (Malhotra et al., 2003).

Dans ce projet, le système UPV d'Olson Engineering a été utilisé afin de monitorer la variation de la vitesse ultrasonore (ondes de compression) des échantillons non-affectés et affectés par la RAS. Cet appareil émet et capte une onde à une fréquence de 54 kHz à l'intérieur du béton à l'aide de transducteurs piézoélectriques (émetteur et récepteur) installés à chaque extrémité et de mesurer le temps nécessaire pour que l'onde se propage à travers le matériau étudié (Figure B.2). Donc une fois que la distance est connue, il est possible de déterminer la

vitesse de propagation des ondes. Dans ce cas, on a appliqué le couplage direct afin d'avoir moins d'interférence possible sur le trajet d'onde ultrasonore ainsi que d'avoir une meilleure concentration d'énergie (Malhotra et al., 2003). En plus, du miel a été utilisé à la place de lubrifiants commerciaux pour assurer un meilleur couplage et d'éviter les problèmes de contamination des échantillons (Figure B.2).

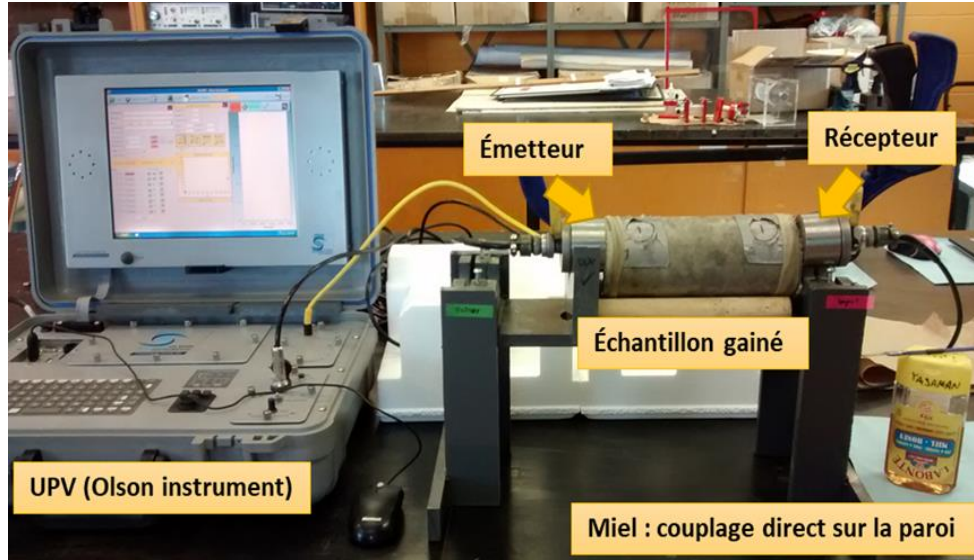


Figure B.2 Système de mesure UPV au laboratoire.

En général, la vitesse de l'onde dépend des propriétés élastiques et de la masse du milieu, et donc si la masse volumique et la vitesse de propagation des ondes sont connues, il est possible d'évaluer les propriétés élastiques. Par exemple pour un milieu infini, homogène, isotrope et élastique, la vitesse de l'onde de compression est donnée par :

$$V = \sqrt{\frac{K \cdot E_d}{\rho}}, \quad K = \frac{(1 - \nu)}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} \quad (\text{B.1})$$

Où V est la vitesse des ondes de compression (km /s), E_d est le Module d'élasticité dynamique ($\text{kg m}^{-1} \text{s}^2$), ρ est la densité (kg/m^3), ν est coefficient de Poisson.

ANNEXE C CALCULE DU FACTEUR GÉOMÉTRIQUE

Dans le but de convertir la résistance en résistivité électrique selon la loi d'Ohm (équation 2.21), le facteur géométrique (K) a été calculé à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics (version 5.2, COMSOL Inc.) en mode de la modélisation électromagnétique-électrostatique (AC/DC module). La méthodologie de calcul de K par COMSOL est présentée ici.

1. La première étape de modélisation est de définir les paramètres comme les dimensions de l'échantillon et le positionnement des électrodes installées (Figure C.1).

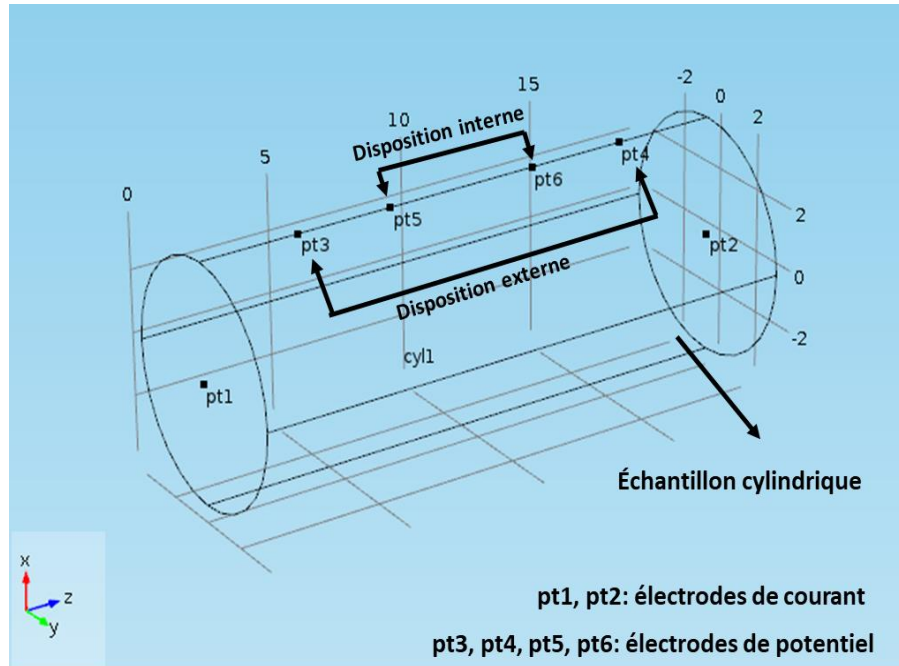


Figure C.1 Définition de la géométrie par COMSOL.

2. L'échantillon doit être considéré comme un milieu homogène et isotrope ayant la conductivité de l'eau interstitielle constante (σ_w en S/m).
3. Définir la valeur de la source de courant injecté (Q_j en $A \cdot m^{-3}$) par les électrodes de courant installées aux extrémités d'échantillon (en supposant que le courant d'extérieur ($J_e=0 \text{ A} \cdot m^{-2}$) et les électrodes de points soient sans impédance de surface).
4. Créer un maillage des tétraèdres et le raffiner autour des points de mesure afin de bien calculer et interpoler la réponse électrique (potentiel) (Figure C.2).

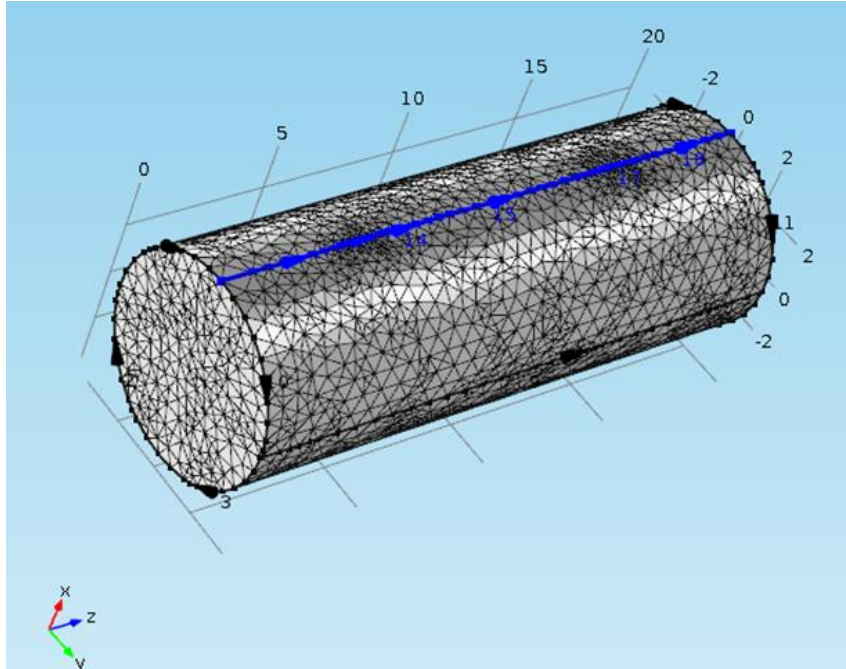


Figure C.2 Maillage établie par COMSOL.

5. Obtenir la réponse électrique (∇V) chaque électrode de potentiel (Figure C.3) à partir de l'équation de Poisson :

$$-\nabla(\sigma \nabla V - J^e) = Q_j, \quad (\text{C.1})$$

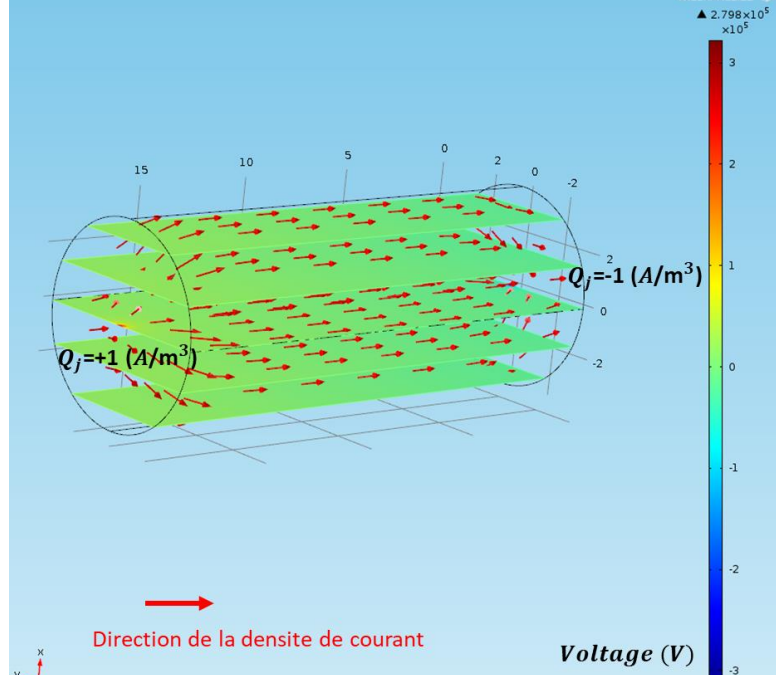


Figure C.3 Calcule de la réponse électrique par COMSOL.

6. Estimer le facteur géométrique (K) pour chaque dipôle de potentiel ($K_{interne} = 0.086$ et $K_{externe} = 0.038$) à partir de la différence de potentiel calculée (ΔV) entre les électrodes de potentiel, le courant appliqué (Q_j ou I en $A\ m^{-3}$), et la conductivité de l'échantillon ($\sigma_{éch}$ en S/m) :

$$K = \frac{I}{\sigma_{éch} \Delta V}. \quad (C.2)$$

Il convient de noter que le facteur géométrique calculé doit être stable lors de la variation des valeurs de $\sigma_{éch}$ et I pour une géométrie donnée (la dimension d'échantillon, la disposition des électrodes). Le calcul du facteur géométrie à l'aide de COMSOL Multiphysics montre l'importance de la géométrie et de l'emplacement des électrodes sur la réponse mesurée d'un matériau.

ANNEXE D CHARGEABILITÉ TOTALE VERSUS UPV

En considérant les résultats physico-mécaniques et celles de PPS, les échantillons RC-NaOH ont montré une corrélation représentative entre la vitesse de l'onde P (UPV) et la chargeabilité totale (Σm) (Figure D.1). Le mélange RC-NaOH a présenté une diminution de la vitesse de UPV de 3% à 6% pour l'augmentation de Σm de 3.5% jusqu'à 7%. Leur tendance est devenue plus élevée par rapport aux mélanges NRC-NaOH, qui ont présenté le même comportement que RC-NaOH au cours des dernières semaines (17 et 22).

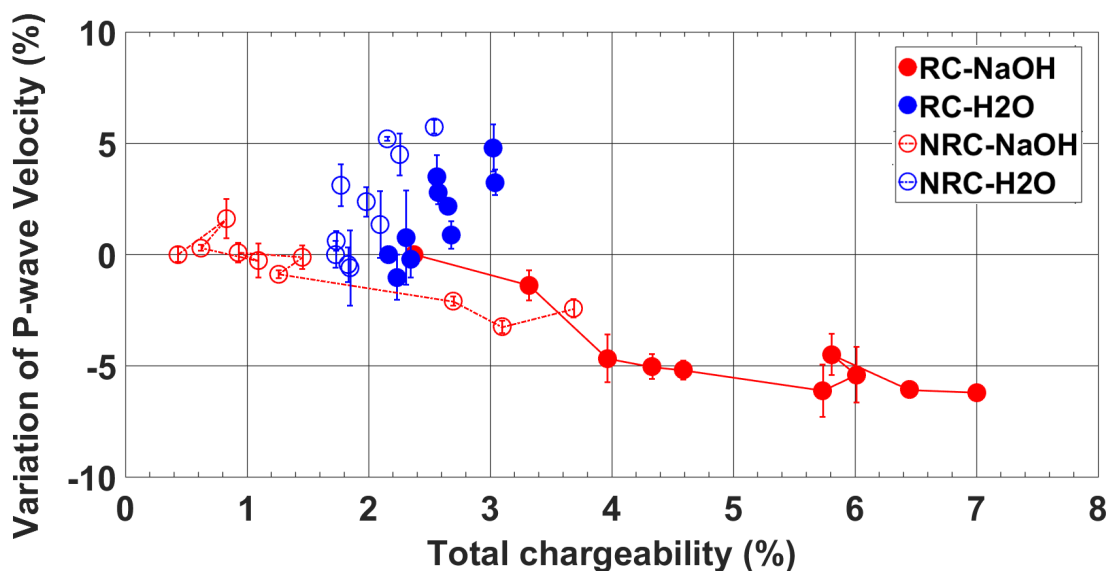


Figure D.1 Corrélation entre la chargeabilité totale et la vitesse de l'onde P (UPV).

Σm) a montré également une tendance linéaire avec l'expansion pour les mélanges affectés par la RAS, ceci a été déjà détaillé dans le chapitre 5 (Figure 6.16). Par conséquent, ces résultats peuvent mettre en évidence la relation entre Σm et les propriétés physico-mécaniques comme l'expansion et la vitesse de UPV au cours d'avancement de la RAS.